



La décroissance bêta des produits de fission pour la non-prolifération et la puissance résiduelle des réacteurs nucléaires

van Minh Bui

► To cite this version:

van Minh Bui. La décroissance bêta des produits de fission pour la non-prolifération et la puissance résiduelle des réacteurs nucléaires. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Ecole des Mines de Nantes, 2012. Français. NNT : 2012EMNA0004 . tel-00834225

HAL Id: tel-00834225

<https://theses.hal.science/tel-00834225>

Submitted on 14 Jun 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Thèse de Doctorat

Van Minh Bui

*Mémoire présenté en vue de l'obtention
du grade de Docteur de l'Ecole des Mines de Nantes
Sous le label de l'Université Nantes Angers Le Mans*

Discipline : Constituants Élémentaires et Physique Théorique
Spécialité : Physique Nucléaire
Laboratoire : Subatech

Soutenue le 29 octobre 2012

École doctorale : Matière, Molécules, Matériaux en Pays de la Loire

Thèse N° : 2012EMNA0004

La décroissance bêta des produits de fission pour la non-prolifération et la puissance résiduelle des réacteurs nucléaires

JURY

Président du jury	M. Lionel LUQUIN , Professeur, EMN
Rapporteurs :	Mme Elsa MERLE-LUCOTTE , Professeur, PHELMA – CNRS/IN2P3/LPSC M. Gérard RIMPAULT , Professeur, INSTN – CEA Cadarache
Examineurs :	M. Alejandro ALGORA , Chercheur HDR, IFIC Valencia
Directeur de Thèse :	M. Jacques MARTINO , Professeur, EMN – CNRS/IN2P3/SUBATECH
Co-directeur de Thèse :	Mme Muriel FALLOT , Maître de Conférences, Université de Nantes – CNRS/IN2P3/SUBATECH

Bố, mẹ và em gái

Remerciements

Dans le contexte de ce travail de thèse, c'est avec émotion que je voudrais remercier tout ce qui, de près ou de loin, m'a aidé à réaliser cette thèse.

Mes remerciements s'adressent à Monsieur Jacques Martino, qui a accepté d'être mon directeur de thèse et qui m'a donné beaucoup d'encouragements pendant la thèse. Je le remercie également en tant que directeur du laboratoire SUBATECH qui m'a accueilli. Je remercie également Monsieur Bernd Grambow qui a pris les fonctions de directeur du laboratoire au cours de ma thèse.

J'adresse ensuite mes remerciements à Muriel Fallot qui m'a accueillie dès le début au laboratoire Subatech et qui est aussi mon encadrante de thèse. J'apprécie profondément tout ce qu'elle a fait pour moi, non seulement dans le travail mais aussi dans la vie privée. Elle m'a beaucoup encouragé pour que j'arrive à la fin de cette thèse et de tout mon coeur, je lui en suis reconnaissant.

Je remercie Gérard Rimpault, Elsa Merle-Lucotte, Lionel Luquin et Alejandro Algora pour avoir accepté d'être membres de mon jury de thèse, et tout particulièrement Gérard Rimpault et Elsa Merle-Lucotte en leur qualité de rapporteurs.

Je remercie aussi tous les membres du groupe ERDRE. Je remercie particulièrement Muriel Fallot, Lydie Giot et Amanda Porta pour tous les travaux que l'on a faits ensemble et aussi pour leur gentillesse et leur pédagogie. Je remercie Nicolas Thiollière pour ses nombreux aides et conseils pendant mon travail. Je n'oublie pas Frédéric Yermia qui était toujours à côté de moi pour m'encourager, pour m'aider en tant qu'un ami, un collègue. Encore une fois, je remercie l'ensemble du groupe ERDRE, surtout les thésards et stagiaires avec qui j'avais l'occasion de discuter et parler.

Je remercie l'ensemble du personnel du Subatech, notamment les secrétaires qui m'ont aidé beaucoup pour les démarches administratives.

Je remercie aussi Magali Estienne et Alexis Nuttin-LPSC Grenoble qui ont accepté d'être membres de mon comité de suivi de thèse. Je remercie également les personnes d'autres laboratoires, IFIC Valence, INP Orsay, LPSC Grenoble et CEA Saclay pour toute la collaboration que l'on a faite ensemble.

Je remercie les thésards de Subatech, Vincent, Eric, Jean-Baptiste, Anthony, Zakari, Ahmed, Hamza, Thomas, Guénolé, Samuel, Sarah, Jérôme, Tugdual et ceux qui ne sont pas cités ici pour les bons moments passés ensemble, les soirées, les repas, notamment Vincent et Eric pour trois années ensemble dans le même bureau. Un grand applaudissement pour Frédéric et Benoît pour les entraînements que l'on a faits ensemble dans la salle de gymnase dans laquelle le sport pour prendre le moral et santé m'est important.

Enfin, je tiens à remercier les personnes qui me sont très chères et toujours à côté de moi, mes parents Van Hoan Bui et Thi Cay Nguyen, et ma sœur Thi Bich Hue Bui. Surtout, elle est venue pour ma soutenance et c'était vraiment un soutien précieux.

Résumé

Aujourd'hui, l'énergie nucléaire représente une partie non-négligeable du marché énergétique mondial, très probablement vouée à croître dans les prochaines décennies. Les réacteurs du futur devront notamment répondre à des critères supplémentaires économiques mais surtout de sûreté, de non-prolifération, de gestion optimisée du combustible et d'une gestion responsable des déchets nucléaires.

Dans le cadre de cette thèse, des études concernant la non-prolifération des armes nucléaires sont abordées, dans le cadre de la recherche et développement d'un nouvel outil potentiel de surveillance des réacteurs nucléaires ; la détection des antineutrinos des réacteurs. En effet, les propriétés de ces particules pourraient intéresser l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) en charge de l'application du Traité de non-prolifération des armes nucléaires. L'AIEA encourage ainsi ses états membres à mener une étude de faisabilité. Une première étude de non-prolifération est réalisée avec la simulation d'un scénario proliférant utilisant un réacteur de type CANDU et de l'émission en antineutrinos associée. Nous en déduisons une prédiction de la sensibilité d'un détecteur d'antineutrinos de taille modeste à la diversion d'une quantité significative de plutonium. Une seconde étude est réalisée dans le cadre du projet Nucifer, détecteur d'antineutrinos placé auprès du réacteur de recherche OSIRIS. Nucifer est un détecteur d'antineutrinos dédié à la non-prolifération à l'efficacité optimisée conçu pour être un démonstrateur pour l'AIEA. La simulation du réacteur OSIRIS est développée ici pour le calcul de l'émission d'antineutrinos qui sera comparée aux données mesurées par le détecteur ainsi que pour caractériser le bruit de fond important émis par le réacteur détecté dans Nucifer. De façon générale, les antineutrinos des réacteurs sont émis lors des décroissances radioactives des produits de fission. Ces décroissances radioactives sont également à l'origine de la puissance résiduelle émise après l'arrêt d'un réacteur nucléaire, dont l'estimation est un enjeu de sûreté. Nous présenterons dans cette thèse un travail expérimental dont le but est de mesurer les propriétés de décroissance bêta de produits de fission importants pour la non-prolifération et la puissance résiduelle des réacteurs. Des premières mesures utilisant la technique de Spectroscopie par Absorption Totale (TAGS) ont été réalisées auprès du dispositif de l'Université de Jyväskylä. Nous présenterons la technique employée, le dispositif expérimental ainsi qu'une partie de l'analyse de cette expérience.

Mots-clés : antineutrinos, non-prolifération, puissance résiduelle, réacteur nucléaire, CANDU, Osiris, Nucifer, décroissance bêta, TAGS, effet Pandémonium.

Summary

Today, nuclear energy represents a non-negligible part of the global energy market, most likely a rolling wheel to grow in the coming decades. Reactors of the future must face the criteria including additional economic but also safety, non-proliferation, optimized fuel management and responsible management of nuclear waste.

In the framework of this thesis, studies on non-proliferation of nuclear weapons are discussed in the context of research and development of a new potential tool for monitoring nuclear reactors, the detection of reactor antineutrinos, because the properties of these particles may be of interest for the International Agency of Atomic Energy (IAEA), in charge of the verification of the compliance by States with their safeguards obligations as well as on matters relating to international peace and security. The IAEA encouraged its member states to carry on a feasibility study. A first study of non-proliferation is performed with a simulation, using a proliferating scenario with a CANDU reactor and the associated antineutrinos emission. We derive a prediction of the sensitivity of an antineutrino detector of modest size for the purpose of the diversion of a significant amount of plutonium. A second study was realized as part of the Nucifer project, an antineutrino detector placed nearby the OSIRIS research reactor. The Nucifer antineutrino detector is dedicated to non-proliferation with an optimized efficiency, designed to be a demonstrator for the IAEA. The simulation of the OSIRIS reactor is developed here for calculating the emission of antineutrinos which will be compared with the data measured by the detector and also for characterizing the level of background noises emitted by the reactor detected in Nucifer. In general, the reactor antineutrinos are emitted during radioactive decay of fission products. These radioactive decays are also the cause of the decay heat emitted after the shutdown of a nuclear reactor of which the estimation is an issue of nuclear safety. In this thesis, we present an experimental work which aims to measure the properties of beta decay of fission products important to the non-proliferation and reactor decay heat. First steps using the technique of Total Absorption Gamma-ray Spectroscopy (TAGS) were carried on at the radioactive beam facility of the University of Jyväskylä. We will present the technique used, the experimental setup and part of the analysis of this experiment.

Key words: antineutrinos, non-proliferation, decay heat, nuclear reactor, CANDU, Osiris, Nucifer, beta decay, TAGS, Pandemonium effect.

Table des matières

Remerciements.....	i
Résumé	iii
Table des matières	v
Liste des tableaux	xi
Liste de figures.....	xiv
Introduction	xxi
Chapitre 1 : Décroissance bêta des produits de fission; antineutrinos pour le contrôle des réacteurs nucléaires ; puissance résiduelle des réacteurs à l'arrêt.....	1
1.1. Contexte énergétique dans le monde actuel.....	2
1.2. Décroissance bêta des produits de fission	6
1.2.1. Généralité	6
1.2.2. Décroissance bêta des noyaux.....	8
1.2.2.1. Introduction de désintégration bêta.....	8
1.2.2.2. Lois de conservation et les regles de sélection.....	9
1.2.2.3. Caractérisation de désintégration bêta.....	9
1.2.2.4. Relation entre la désintégration bêta et les applications autour des reacteurs nucléaires.....	11
1.2.3. Puissance résiduelle émis après l'arrêt d'un réacteur nucléaire.....	12
1.2.3.1. Calcul de puissance résiduelle.....	14
1.2.3.2. Effet Pandémonium.....	16
1.2.4. Introduction sur les antineutrinos des réacteurs	17
1.2.5. Motivations de méthode TAGS pour les mesures de désintégration bêta des produits de fission à vie courte.....	20
1.2.5.1. Technique d'absorption totale de spectroscopie des rayons gamma	20
1.2.5.2. Détermination des énergie moyenne avec un détecteur TAGS.....	22
1.2.5.3. Application de la technique TAGS à ce problème de puissance résiduelle	23
1.2.5.4. Proposition de mesures TAGS pour la puissance résiduelle des réacteurs à l'arrêt	24
1.2.5.5. Mesures récentes par la technique TAGS réalisées par l'équipe de Valence. .	26
1.2.5.6. Proposition de mesures TAGS pour le spectre en énergie des antineutrinos des réacteurs	27
Chapitre 2 : Outils de simulation MCNPX/ MURE	31
2.1. Code de simulation stochastique MCNP	32
2.1.1. Principe de Monte-Carlo	32

2.1.2. MCNP.....	33
2.1.2.1. Principe de calcul MCNP.....	33
2.1.2.2. Calcul de criticité	34
2.1.2.3. Résultats dans MCNP.....	36
2.2. Le code MURE.....	37
2.2.1. Définition de géométrie pour MCNP	38
2.2.2. Construction de l'arbre des filiations	39
2.2.3. Evolution dans MURE	40
2.2.4. Illustration graphique des résultats.....	42
Chapitre 3 : Réacteur CANDU et la simulation pour la non-prolifération.43	
3.1. Réacteur CANDU	44
3.1.1. Eau lourde	45
3.1.2. Uranium naturel.....	46
3.1.3. Tubes de force	46
3.1.4. Rechargement du combustible du réacteur CANDU	47
3.2. Simulation d'une grappe de combustible du réacteur CANDU	48
3.2.1. Géometrie simulée.....	49
3.2.2. Coefficients de contre-réaction	52
3.2.2.1. Coefficient Doppler.....	52
3.2.2.2. Coefficient de vidange	53
3.2.3. Résultats de simulation d'une grappe.....	54
3.3. Simulation d'un canal de 12 grappes de combustible.....	56
3.3.1. Géometrie simulée.....	57
3.3.2. Résultats de simulation d'un canal de combustible	57
3.3.3. Discussions sur les fuites, les absorptions négligées, le temps de résidence	59
3.4.Simulation du rechargement d'un canal de combustible	60
3.4.1. Simulation du rechargement « normal » à 200 jours	60
3.4.2. Simulation du rechargement « proliférant ».....	62
3.4.2.1. Présentation du scénario grossier choisi.....	63
3.4.2.2. Rechargement à 100 jours et 300 jours, 50 jours et 350 jours	64
3.4.2.2.1. Résultats du rechargement à 100 jours et 300 jours.....	64
3.4.2.2.2. Résultats du rechargement à 50 jours et 350 jours.....	67
3.5. Calcul du flux d'antineutrinos	71
3.6. Résultats du scénario proliférant étudié : Comparaison normale/proliférante	72

3.7. Discussion sur les erreurs	75
3.7.1. Erreurs sur les taux de fission calculés.....	75
3.7.2. Erreurs sur la décroissance β^- des produits de fission	77
3.8. Conclusion et perspectives.....	77
Chapitre 4 : Simulation du réacteur Osiris pour l'expérience Nucifer	79
4.1. Expérience Nuclifer	80
4.1.1 Description du détecteur d'antineutrinos Nucifer.....	80
4.1.2. Démarche actuelle	83
4.2. Réacteur de recherche Osiris	84
4.2.1. Réacteur de recherche Osiris.....	84
4.2.2. Contraintes pour l'expérience générées par les bruits de fond.....	87
4.3. Simulation des antineutrinos émis par le réacteur de recherche Osiris	89
4.3.1. Géométrie simulée.....	90
4.3.2. Résultats de simulation.....	92
4.3.2.1. Résultats de simulation avec du cœur nu	92
4.3.2.2. Rechargement du réacteur Osiris	93
4.3.3. Calcul du flux d'antineutrinos associé	98
4.3.3.1. Résultats de simulation avec du cœur nu. Calcul réalisé avec les concentrations des produits de fission de MURE.....	98
4.3.3.2. Calcul réalisé en utilisant les spectres de référence	100
4.3.4. Mis à jour de la simulation du cœur du réacteur Osiris avec les données du CEA de Saclay	100
4.3.5. Discussion sur les erreurs.....	102
4.3.5.1. Erreurs associées aux taux de fission	102
4.4. Simulation du bruit de fond photonique produit par le réacteur Osiris pour l'expérience Nucifer	103
4.4.1. Coefficient d'atténuation des photons.....	103
4.4.2. Présentation de la simulation.....	105
4.4.3. Options de physique de MCNPX.....	106
4.4.4. Tests réalisés et études des contributions des différents processus au flux des photons produits par le réacteur OSIRIS.....	107
4.4.4.1. Coefficients d'atténuation des photons	107
4.4.4.2. Production des paires	108
4.4.4.3. Atténuation des neutrons et captures radiatives	109
4.4.4.4. Réactions de photofission.....	111
4.4.4.5. Diffusion Thomson	111

4.4.4.6.	Réactions (n,xn)	111
4.4.4.7.	Réactions photonucléaires.....	112
4.4.4.8.	Réactions de fluorescence et effet photoélectrique	113
4.4.4.9.	Contributions des photons retardés	117
4.4.4.10.	Rayonnement de freinage (Bremsstrahlung).....	118
4.4.4.11.	Temps de calcul requis pour les simulations.....	119
4.4.4.12.	Prédiction du spectre en énergie des photons dans la casemate de Nucifer...	120
4.5.	Conclusions et perspectives	125
4.5.1.	Prédiction de l'émission en antineutrinos du réacteur OSIRIS.....	125
4.5.2.	Prédiction de l'émission photonique du réacteur OSIRIS pour Nucifer.....	126
Chapitre 5 :	Contribution à l'analyse d'une expérience réalisée avec la	
méthode TAGS pour la puissance résiduelle et les antineutrinos des	réacteurs	127
5.1.	Dispositif expérimental	129
5.1.1.	Production du faisceau d'ions radioactifs.....	129
5.1.2.	Piège de Penning	132
5.1.3.	Installation expérimentale à Jyväskylä	134
5.1.3.1.	Un nouveau détecteur TAGS	134
5.1.3.2.	Dispositif expérimental à Jyväskylä.....	135
5.1.3.3.	Electronique et acquisition des données.....	137
5.2.	Contribution à l'analyse : Calibration en énergie des détecteurs	139
5.2.1.	Mesures réalisées.....	140
5.2.2.	Résultats	140
5.2.2.1.	Calibration en énergie	140
5.2.2.1.1.	Ajustement des pics alpha pour chaque détecteur et chaque run	141
5.2.2.1.2.	Calibration en énergie des 12 détecteurs.....	142
5.2.2.1.2.1.	Pré-calibration avec la source ^{22}Na	143
5.2.2.1.2.2.	Source de ^{60}Co et ^{137}Cs	143
5.2.2.1.2.3.	Généralisation des coefficients de calibration en fonction des positions des pics alpha	144
5.2.2.1.3.	Calibration des sommes logicielles et statistiques	145
5.2.2.1.4.	Calibration de la somme logicielle.....	148
5.2.2.1.5.	Calibration de la somme statistique	149
5.2.2.2.	Résolution en énergie	150
5.2.2.3.	Résolution en énergie pour la somme logicielle	151
5.2.2.4.	Résolution en énergie pour la somme statistique	153
5.2.2.5.	Conclusions sur la résolution en énergie.....	154
5.2.3.	Comparaison des différentes calibration	155
5.3.	Suite de l'analyse des données.....	156
5.4.	Conclusions et perspectives	158

Conclusions et Perspectives	160
Bibliographie.....	164

Liste de tableaux

Tableau 1.2.1 : Puissance thermique dégagée avant et après l'arrêt du réacteur. [17]	12
Tableau 1.2.2 : Caractéristiques principales des antineutrinos provenant des fissions de l' ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu et du ^{241}Pu , dans un réacteur de type REP 900 standard [30], [32].....	19
Tableau 1.2.3 : Liste de demande en haute priorité pour la mesure TAGS. [39], [14]	26
Tableau 1.2.4 : Caractéristiques des noyaux $^{92,93}\text{Rb}$ mesures en novembre 2009 [51]......	29
Tableau 3.1.1 : Caractéristique de quelques modérateurs [60].	45
Tableau 3.1.2 : Propriétés physiques de l'eau lourde [60].	46
Tableau 3.2.1 : Dimensions d'une grappe de combustible [62], [64].	49
Tableau 3.2.2 : Caractéristiques des structures dans la simulation d'une grappe de combustible d'un réacteur CANDU [62], [64], [66]......	49
Tableau 3.2.3 : Effet Doppler dans une grappe de combustible du réacteur CANDU.	53
Tableau 3.2.4 : Effet de vide dans une grappe de combustible de réacteur Candu.....	53
Tableau 3.4.1 : Définition d'une quantité significative et du délai pertinent pour un détournement d'après le glossaire de l'AIEA [69].....	63
Tableau 3.4.2 : Bilan de masse de l' ^{235}U , de l' ^{238}U , du ^{239}Pu et du ^{241}Pu dans le canal au 1 ^{er} rechargement, au 2 ^{ème} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 100 jours.	70
Tableau 3.4.3 : Bilan de masse de l' ^{235}U , de l' ^{238}U , du ^{239}Pu et du ^{241}Pu dans le canal au 1 ^{er} rechargement, au 2 ^{ème} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 200 jours.	70
Tableau 3.4.4 : Bilan de masse de l' ^{235}U , de l' ^{238}U , du ^{239}Pu et du ^{241}Pu dans le canal au 1 ^{er} rechargement, au 2 ^{ème} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 300 jours.	70
Tableau 3.4.5 : Bilan de masse de l' ^{235}U , de l' ^{238}U , du ^{239}Pu et du ^{241}Pu dans le canal au 1 ^{er} rechargement, au 2 ^{ème} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 350 jours.	70
Tableau 3.4.6 : Bilan de masse de l' ^{235}U , de l' ^{238}U , du ^{239}Pu et du ^{241}Pu dans le canal au 1 ^{er} rechargement, au 2 ^{ème} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 50 jours.	71

Tableau 3.7.1 : Erreurs sur les taux de fission déduites d'une étude menée pour un REP, en ne sommant quadratiquement que les erreurs supposées décorréliées entre les 2 scénarios considérés.	76
Tableau 4.2.1 : Bilan des mesures de bruit de fond effectuées au niveau de l'emplacement du détecteur Nucifer près du réacteur de recherche OSIRIS de Saclay [81].	88
Tableau 4.2.2 : Raies gamma identifiées dans la partie haute énergie du spectre de la figure 4.2.3 [86].	89
Tableau 4.3.1 : Principales caractéristiques du réacteur Osiris [83], [87]	92
Tableau 4.3.2 : Plan de rechargement adapté pour l'étude de rechargement du réacteur Osiris.	94
Tableau 4.3.3 : Illustration des masses de combustible dans le cœur juste avant et après de rechargement à 260 jours.	94
Tableau 4.3.4 : Caractéristique du combustible dans les 7 groupes d'assemblages du cœur du réacteur Osiris. Les nombres correspondent au nombre de jours où le combustible réside dans le cœur.	96
Tableau 4.3.5 : Erreurs des taux de fission calculées dans le cas de la simulation des REP – N4 de la centrale de Chooz avec le code MURE.	102
Tableau 4.4.1: Coefficient d'atténuation des gammas avec la géométrie de l'expérience Nucifer [91].	104
Tableau 4.4.2: Rapport de flux des gammas dans différentes couches de la piscine et du mur de béton.	108
Tableau 4.4.3 : Coefficient d'atténuation dans une couche de 50 cm de la piscine et du mur de béton.	108
Tableau 4.4.4 : Pourcentage de productions de paires contribuant aux pertes des gammas en fonction de la coupure en énergie.	109
Tableau 4.4.5 : Simulation du flux de neutrons observé en fonction de la distance par rapport au cœur dans la piscine.	110
Tableau 4.4.6 : Seuil des principales réactions photonucléaires sur des éléments que l'on trouve communément dans un réacteur nucléaire et son enceinte [99].	112
Tableau 4.4.7 : Résultats des deux simulations réalisées avec et sans ^{40}K dans le mur de béton.	113
Tableau 4.4.8 : Contributions du cœur, de la piscine et du mur de béton à la fluorescence. ...	116

Tableau 4.4.9 : Contributions du rayonnement de freinage aux traces des photons pour les simulations avec le cœur seul (C), le cœur et la piscine (CP) et la géométrie complète (CPM).....	118
Tableau 4.4.10 : Options physiques de carte PHYS:P utilisée pour la simulation des spectres des gammas dans la casemate.	120
Tableau 5.2.1: Comparaison les valeurs en énergie des pics alpha entre celles calculées expérimentales et celles de référence (somme logiciel).....	148
Tableau 5.2.2 : Comparaison des valeurs en énergie des pics alpha entre celles calculées expérimentales et celles de référence (somme statistique).....	149
Tableau 5.2.3 : Valeurs de sigma gauche et droit pour chaque pic de source, calibré avec une fonction gaussienne asymétrique dans le cas de spectre de somme logiciel.	151
Tableau 5.2.4 : Valeurs de sigma gauche et droit pour chaque pic de source, calibré avec une fonction gaussienne asymétrique dans le cas de spectre de somme statistique.....	151
Tableau 5.2.5 : Bilan de source : la valeur de l'énergie calibrée et son énergie de référence, le sigma, la différence entre la valeur expérimentale de sigma et la valeur de sigma calculée à partir de l'énergie de référence (somme logiciel).....	153
Tableau 5.2.6 : Bilan de source : la valeur de l'énergie calibrée et son énergie de référence, le sigma, la différence entre la valeur expérimentale de sigma et la valeur de sigma calculée à partir de l'énergie de référence (somme statistique).	154
Tableau 5.2.7 : Résolution des pics dans le spectre de somme logiciel (absorption totale R_{TAS}) et le spectre somme statistique (monocristal R_{SC})	155
Tableau 5.2.8 : Résolution du pic pour le 'total absorption spectra' (RTAS) et le 'single crystal spectra' (RSC)	155

Liste des figures

Fig. 1.1.1 : Répartition réelle et programmée des réacteurs nucléaires dans le monde au 31/01/2009 [1]	2
Fig. 1.1.2 : Projections sur le parc nucléaire mondial selon les agences intergouvernementales. Source : AEN (2008), AIEA (2010), AIE (2008, 2010) [6]	4
Fig. 1.1.3 : Fourchettes régionales des coûts moyens actualisés de l'électricité pour les centrales nucléaires, à charbon, à gaz et les parcs éoliens terrestres. [7]	5
Fig. 1.2.1 : Distribution des produits de fission en fonction des quatre noyaux principaux [11].	6
Fig. 1.2.2 : Les différentes sources de rayonnements issues lors de la fission. [12]	7
Fig. 1.2.3 : Puissance résiduelle du combustible UOx (3.25% ^{235}U) pour un taux de combustion (burnup) de 33GWj/t en fonction du temps de refroidissement dans un REP900 [18].	13
Fig. 1.2.4 : Evolution temporelle des incertitudes sur la puissance résiduelle d'un REP en fonction du temps de refroidissement, extrait de la référence [18].	15
Fig. 1.2.5 : Illustration l'effet de Pandémonium pour la décroissance bêta et gamma.	16
Fig. 1.2.6 : Comparaison de puissance résiduelle du ^{239}Pu pour plusieurs bases de données et pour différentes expériences.	17
Fig. 1.2.7 : Illustration de principe de TAGS : La figure à gauche décrit un tel schéma de décroissance bêta d'une source et la figure à droite décrit la réponse avec le détecteur TAGS. Dans cette source, seul le niveau plus haut à la réponse dans TAGS qui donne le pic somme correspondant à cette énergie.	21
Fig. 1.2.8 : La courbe à gauche illustre la puissance résiduelle du component de gamma après la fission du ^{239}Pu sans correction de TAGS (10% à 70s). La courbe à droite décrit la même chose mais avec la correction de TAGS.	23
Fig. 1.2.9 : Comparaison de la composante électromagnétique de la puissance résiduelle du ^{239}Pu avant et après l'inclusion des dernières mesures réalisées par la technique TAGS par l'équipe de l'IFIC [40], avec les données de Tobias et al. [41], considérées comme la référence dans le domaine.	27
Fig. 2.1.1 : Pas aléatoire des neutrons dans la matière [56].	32
Fig. 2.2.1 : Principe général d'un calcul d'évolution dans MURE	38

Fig. 2.2.2 : L'arbre des filiations d'un noyau X avec les multiples ascendants e descendants par décroissance ou réaction.	39
Fig. 2.2.3 : Interface graphique de MureGui.....	42
Fig. 3.1.1 : Rechargement d'un canal de réacteur CANDU, par 8 grappes dans cet exemple (N : grappe neuve, V : grappe vieille), figure extraite de la thèse de P. Guillemin [64].	48
Fig. 3.2.1 : Profil de la grappe simulée du réacteur CANDU	50
Fig. 3.2.2 : Un pavage d'un crayon combustible dans une grappe.	51
Fig. 3.2.3 : Profil d'une grappe de combustible avec la discrétisation radiale choisie.	52
Fig. 3.2.4 : Facteur de multiplication d'une grappe de combustible.....	54
Fig. 3.2.5 : Inventaire d'une grappe de combustible.....	55
Fig. 3.2.6 : Taux de réaction d'une grappe de combustible.	55
Fig. 3.2.7 : Spectre des neutrons dans la couronne extérieure et couronne intérieure.	56
Fig. 3.3.1 : Une partie de géométrie du canal au joint de deux grandes grappes.....	57
Fig. 3.3.2 : Comparaison le facteur de multiplication entre la grappe et le canal.....	58
Fig. 3.3.3 : Inventaire d'un canal de combustible.	58
Fig. 3.3.4 : Taux de réaction d'un canal de combustible.	59
Fig. 3.4.1 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 200 jours.	61
Fig. 3.4.2 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 200 jours.	61
Fig. 3.4.3 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 200 jours....	61
Fig. 3.4.4 : Vecteur du plutonium en fonction de temps ou le combustible réside dans le réacteur.....	62
Fig. 3.4.5 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 100 jours.	64
Fig. 3.4.6 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 100 jours.	64
Fig. 3.4.7 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 100 jours....	65
Fig. 3.4.8 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 300 jours.	65
Fig. 3.4.9 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 300 jours.	66
Fig. 3.4.10 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 300 jours..	66

Fig. 3.4.11 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 50 jours.	67
Fig. 3.4.12 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 50 jours.	67
Fig. 3.4.13 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 50 jours....	68
Fig. 3.4.14 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 350 jours.	68
Fig. 3.4.15 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 350 jours.	69
Fig. 3.4.16 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 350 jours..	69
Fig. 3.6.1 : Flux des antineutrinos émis pour les rechargements à 100 (courbe noire), 200 (courbe rouge) et 300 jours (courbe bleue).	73
Fig. 3.6.2 : Flux des antineutrinos détecté dans un détecteur de 'jeu' placé à 25m du canal simulé pour les rechargements à 100 (courbe noire), 200 (courbe rouge) et 300 jours (courbe bleue).....	73
Fig. 3.6.3 : Flux d'antineutrinos détectés à l'équilibre pour 400 canaux dans le cas d'un détecteur de 'jeu' à 25m pour le cas normal (noir) et le cas proliférant 100j/300j (rouge).	74
Fig. 3.7.1 : Comparaison des spectres d'antineutrinos à 350 jours pour les différents types de rechargement.	76
Fig. 4.1.1 : Le plan du détecteur Nucifer avec le blindage et le détecteur veto à muons.....	83
Fig. 4.1.2 : Gauche : Cible du détecteur d'antineutrinos. Droite : Intérieur d'un module du veto à muons.....	83
Fig. 4.2.1 : Section horizontale du cœur du réacteur Osiris [83].	83
Fig. 4.2.2 : Section horizontale d'un emplacement équipé de 4 fours Chouca [83].	86
Fig. 4.2.3 : Position de casemate dans le bâtiment du réacteur Osiris [84].....	87
Fig. 4.2.4 : Spectre mesuré avec un détecteur au Ge du bruit de fond gamma dans la casemate OSIRIS.....	89
Fig. 4.3.1 : Section horizontale du cœur du réacteur OSIRIS simulé.	90
Fig. 4.3.2 : Simulation du four Chouca pour l'emplacement expérimental.	91
Fig. 4.3.3 : Section horizontale du réacteur OSIRIS simulé.	91
Fig. 4.3.4 : Spectre simulé des neutrons dans le four Chouca et comparaison avec celui de référence simulé par F. Malouch [83].	92
Fig. 4.3.5 : Comparaison du facteur de multiplication infini avec et sans la présence d'Hafnium.	93

Fig. 4.3.6 : Facteur de multiplication infini simulé avec un rechargement d'un 1/7 par cycle.	95
Fig. 4.3.7 : Simulation de l'inventaire en ^{235}U dans le réacteur Osiris avec un rechargement 1/7 par cycle.	95
Fig. 4.3.8 : Simulation de l'inventaire en ^{238}U dans le réacteur Osiris avec un rechargement 1/7 par cycle.	96
Fig. 4.3.9 : Simulation de l'inventaire en ^{239}Pu et ^{241}Pu dans le réacteur Osiris avec un rechargement 1/7 par cycle.	97
Fig. 4.3.10 : Taux de fission de quatre noyaux principaux : ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu dans le réacteur Osiris avec un rechargement 1/7 par cycle.	97
Fig. 4.3.11 : Distribution de taux de fission parmi les 4 noyaux principaux ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu .	98
Fig. 4.3.12 : Flux d'antineutrinos émis obtenus correspondant à la simulation présentée.	99
Fig. 4.3.13 : Flux d'antineutrinos détectés dans un détecteur de 'jeu' placé à 7m du réacteur OSIRIS.	99
Fig. 4.3.14 : Profil du cœur du réacteur Osiris avec la modification de géométrie.	101
Fig. 4.3.15 : Comparaison du spectre des neutrons avec la modification de géométrie et géométrie homogène et le spectre de référence.	101
Fig. 4.4.1 : Discrétisation de la géométrie du réacteur Osiris pour la simulation des gammas dans la casemate.	105
Fig. 4.4.2: Principe du calcul de la valeur de l'importance dans les cellules [93].	106
Fig. 4.4.3 Importance relative parmi les 3 types majeurs d'interaction des gammas [98].	108
Fig. 4.4.4 : Evolution du spectre en énergie des photons émis en fonction de leur distance au cœur du réacteur.	111
Fig. 4.4.5 : Illustration des transitions entre les niveaux atomiques des électrons, à l'origine de l'émission de rayons X (fluorescence) [95].	113
Fig. 4.4.6 : Illustration des transitions entre les niveaux atomiques des électrons, à l'origine de l'émission de rayons X (fluorescence) [98].	114
Fig. 4.4.7: taux de production de la fluorescence pour les photons X provenant des couches K, L et M en fonction du numéro atomique Z [98].	115
Fig. 4.4.8 : Caractéristique de fluorescence du plomb et de l'uranium [98].	115

Fig. 4.4.9 : Raies de fluorescence K_{α} et K_{β} dans la simulation du cœur du réacteur Osiris. .	116
Fig. 4.4.10 : Présentation des types de spectre des gammas dans le cœur du réacteur Osiris : Gammas prompts, gamma retardés et gammas prompts + gammas retardés.....	117
Fig. 4.4.11: Spectre de Bremsstrahlung des gammas dans le cœur du réacteur Osiris à 5 jours.	119
Fig. 4.4.12 : Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 1heure.	121
Fig. 4.4.13 : Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 5 heures.....	121
Fig. 4.4.14 : Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 1 jour.....	122
Fig. 4.4.15: Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 10 jours.	122
Fig. 4.4.16 : Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 20 jours.	123
Fig. 4.4.17 : Différence du flux des photons entre les simulations avec et sans coupure à 2 MeV en fonction du temps.	124
Fig. 4.4.18 : Différence du flux des photons dans la casemate avec le cœur chargé de combustible neuf et le cœur à l'équilibre en fonction du temps.	125
Fig. 5.1.1 : Profil d'équipement IGISOL. Sur la figure : 1. Guide d'ions, 2. Faisceau du cyclotron K130, 3. Décharge du faisceau, 4. Chambre d'accélération, 5. Dipôle d'aimant, 6. Switchyard, 7. RFQ, 8. Piège de Penning, 9. Déflecteur de mini quadripôle, 10. Déflecteur électrostatique et faisceau vers en haut, 11. Structure expérimentale [14].	130
Fig. 5.1.2 : Principe général de fonctionnement d'un guide d'ions [103].....	131
Fig. 5.1.3 : Profil de structure de JYFLTRAP [14].	131
Fig. 5.1.4 : Illustration du mouvement d'un ion dans un piège de Penning.....	133
Fig. 5.1.5 : Un exemple de séparation de masse du piège de Penning pour la masse de 105 [14].	134
Fig. 5.1.6 : Détecteurs BaF_2 de l'expérience TAGS.	134
Fig. 5.1.7 : Installation expérimentale d'une expérience TAGS [14].	136
Fig. 5.1.8 : Photo de l'installation utilisée pour l'expérience, vue d'en haut.....	137
Fig. 5.1.9 : Schéma de l'électronique de l'expérience [104].	138

Fig. 5.1.10 : Spectre lent et rapide pour sélectionner le pic alpha [104].	139
Fig. 5.2.1 : Différence (en rouge) entre un run de la source de ^{60}Co (en vert) et un run de la source ^{137}Cs (en bleu), après normalisation des pics alpha.	141
Fig. 5.2.2 : Position du pic alpha en fonction du temps pour le détecteur 1 (données en bleu, régression linéaire en rouge). L'erreur indiquée provient de l'écart maximal toléré de 5 canaux.	142
Fig. 5.2.3 : En rouge est le produit de soustraction du bruit de fond (vert et violet) des données de la source ^{22}Na (bleu).	143
Fig. 5.2.4 : Ajustement linéaire du coefficient a (gauche) et b (droit) en fonction de position du pic alpha pour le détecteur 2.	143
Fig. 5.2.5 : Exemple de données de la source de ^{60}Co avant soustraction en bleu pour l'un des détecteurs, les données de bruit de fond en violet et les données après soustraction du bruit de fond en rouge.	144
Fig. 5.2.6 : Exemple d'ajustement avec la double fonction de Gauss pour le détecteur 4.	144
Fig. 5.2.7 : Spectre de la somme logicielle (spectre d'absorption totale) de chaque source après avoir soustrait les bruits de fond correspondants (courbe bleue) superposés avec le spectre de la somme logicielle de la source (courbe noire) et les spectres de somme des bruits de fond (courbe rouge et verte).	146
Fig. 5.2.8 : Spectres sommes des 12 détecteurs après avoir soustrait par les bruits de fond (courbe rouge) et les spectres individuels de chaque détecteur (autres couleurs).	147
Fig. 5.2.9 : Pics expérimentaux en fonction de pics de référence (en énergie) (somme logiciel).	148
Fig. 5.2.10 : Différence entre énergie expérimentale et de référence en fonction de l'énergie de référence (somme logiciel).	149
Fig. 5.2.11 : Pics expérimentaux en fonction de pics de référence (en énergie) (somme statistique).	150
Fig. 5.2.12 : Différence entre énergie expérimentale et de référence en fonction de l'énergie de référence (somme statistique).	150
Fig. 5.2.13 : Courbe de σ^2 en fonction de énergie calibrée en formule $\sigma^2 = p_0 E^2 + p_1 E$ pour le somme logiciel.	152
Fig. 5.2.14 : Différence entre les valeurs estimées du sigma par calibration et celles évaluées de l'expérience (somme logiciel).	152

Fig. 5.2.15 : Courbe de σ^2 en fonction de énergie calibrée en formule $\sigma^2 = p_0 E^2 + p_1 E$ pour le somme statistique.....	153
Fig. 5.2.16 : Différence entre les valeurs estimées du sigma par calibration et celles évaluées de l'expérience (somme statistique).	154
Fig. 5.3.1 : Différentes vues de la géométrie du détecteur simulée avec MCNPX.....	156
Fig. 5.3.2 : Comparaison entre le spectre brut de la source de ^{92}Rb (noir), son bruit de fond (vert), l'empilement du noyau (gris foncé) et du bruit de fond (gris clair). Les différences entre le spectre du noyau et le bruit de fond (vert), le noyau et le bruit de fond sans son empilement (bleu) et le spectre nettoyé final (noyau – bruit de fond sans son empilement – empilement du noyau, bleu), sont aussi montrés.	157
Fig. 5.3.3 : Gauche : comparaison entre les données (en noir) et le spectre (bleu) reconstruit à partir de la réponse du détecteur TAGS et de l'alimentation beta incluant les informations présentes actuellement dans les bases de données nucléaires pour le ^{92}Rb [106]. Droite : comparaison entre les données (en noir) et le spectre (bleu) reconstruit à partir de la réponse du détecteur TAGS et en laissant libre de changer l'alimentation bêta.	158

Introduction

Dans le contexte actuel, suite au besoin énergétique mondial, parmi les sources d'énergie en provenant de combustible fossile, d'hydraulique..., l'énergie nucléaire fournit un moyen afin de satisfaire les demandes énergétiques sans cesse à augmenter dans le monde, surtout dans les pays en voie de développement tels que la Chine, l'Inde. D'autre part, l'utilisation de l'énergie nucléaire permet à limiter les émissions de gaz à effet de serre.

Néanmoins, l'utilisation de l'énergie nucléaire doit être assurée de sûreté en fonctionnement et aussi pour le but civil mais non-militaire. Actuellement, les réacteurs nucléaires utilisent les combustibles enrichis pas plus grands de 5% de l'uranium 235. Donc, ils ont largement de possibilité de former du plutonium 239 qui se servira à fabriquer une bombe nucléaire. Le problème de sûreté, notamment la puissance résiduelle due à la décroissance bêta/gamma des produits de fission dans le cadre de cette thèse, est abordé à cause des désaccords des plusieurs bases de données dont les décroissances des noyaux sont mal estimées.

Les produits de fission émettent toujours des antineutrinos lors de sa décroissance bêta-. Aujourd'hui, les détecteurs d'antineutrinos sont considérés comme une méthode innovante pour surveiller surtout les compositions des combustibles des réacteurs nucléaires en marche. L'Agence International de l'Energie Nucléaire (AIEA) s'y intéresse et de nombreux projets de détecteurs d'antineutrinos dédiés à la non-prolifération ont débuté dans le monde récemment.

L'estimation des émissions des antineutrinos est effectuée premièrement avec le réacteur Candu dont la caractéristique de tube de force facilite de recharger les combustibles en ligne, donc, le retraitement des grappes de combustible qui contiennent du plutonium 239 à taux souhaitable.

Dans le cadre du projet Nucifer pour un détecteur d'antineutrinos en collaboration entre le CEA et le laboratoire Subatech, la simulation du réacteur Osiris est effectuée pour le but de comparer les bruits de fond sortis de simulation et ceux mesurés expérimentalement pour les bases de données du Nucifer.

La sûreté des réacteurs à l'arrêt où environ de 7% de l'énergie nominale thermique est dégagée après quelques secondes (une seconde) devient importante parce que ce chiffre peut varier selon la base de données (l'écart peut atteindre 10%). Aujourd'hui, plusieurs études sont effectuées pour corriger les bases de données afin d'éviter l'incertitude. Une parmi eux est la méthode TAGS (Total Absorption Gamma-ray Spectrometer). Le travail est concerné à la mesure expérimentale des noyaux incertains de décroissance bêta.

Chapitre 1 :

La décroissance bêta des produits de fission,
source des antineutrinos et de la puissance
résiduelle des réacteurs

1.1. Contexte énergétique dans le monde actuel

Depuis la découverte de l'atome et la maîtrise des réactions en chaîne, l'énergie nucléaire devient une partie majeure et indispensable dans le marché de l'énergie mondiale. Elle représente 14% environ de la production d'électricité totale et en particulier 78% en France en 2009. Avec l'augmentation de la population mondiale, l'épuisement de plus en plus important des ressources fossiles, des pays développés cherchent à augmenter la contribution de l'énergie nucléaire dans leur production énergétique nationale. De l'avis général, l'énergie, et en particulier l'électricité, est indispensable au développement économique et social et à la qualité de vie mais pour cette raison, la planète est confrontée aux menaces que font peser sur l'environnement : le changement climatique provoqué par les émissions de CO₂ et éventuellement la pénurie de sources d'énergie qui peut entraîner la hausse des prix. Bien que l'accident nucléaire récent de Fukushima suscite la réflexion quant à la décision de construire de nouvelles centrales nucléaires dans certains pays développés, le recours à l'énergie nucléaire trouve une aube nouvelle dans des pays en voie de développement (la Chine, le Vietnam...).

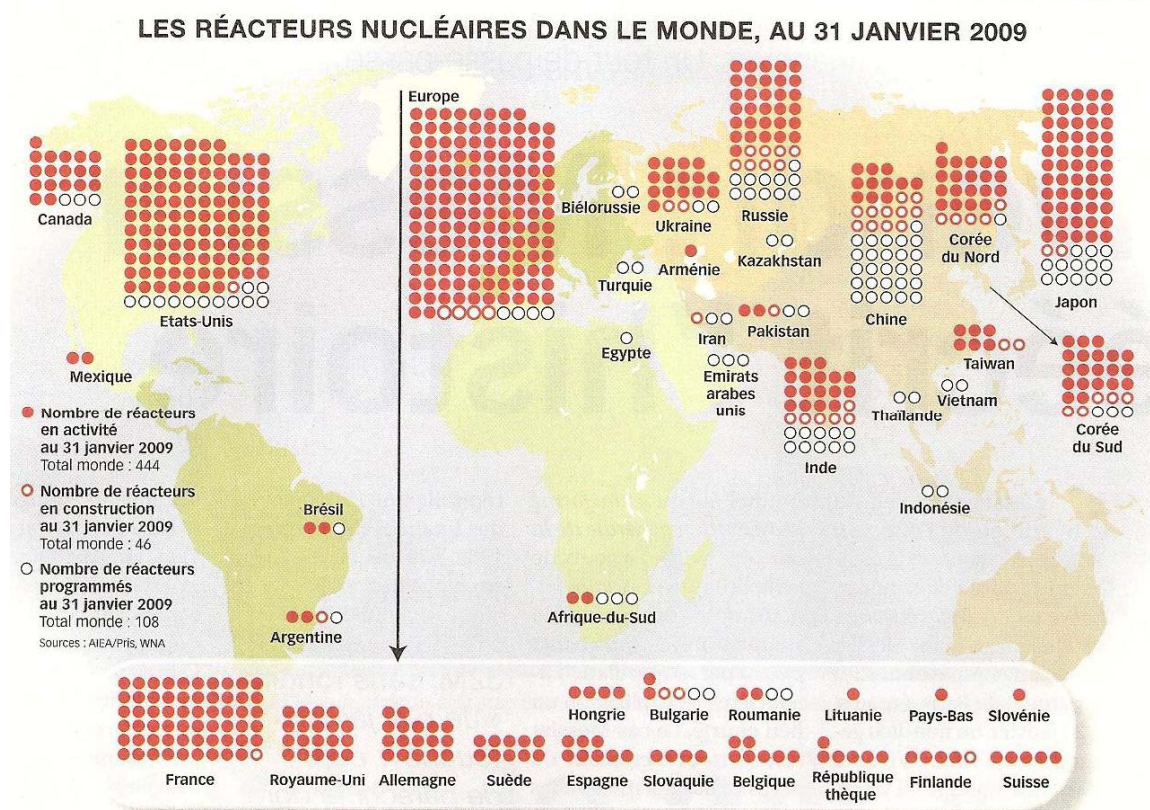


Fig. 1.1.1 : Répartition réelle et programmée des réacteurs nucléaires dans le monde au 31/01/2009 [1]

De nos jours, les trois principales sources d'énergie fossile utilisées dans le monde se raréfient. Au rythme actuel de leur consommation, les réserves connues de pétroles seront en voie d'épuisement dans une quarantaine d'années [2] Le délai est de l'ordre de soixante ans pour le gaz et 250 à 300 ans pour le charbon. Même si l'on découvre, ici ou là, de nouveaux

gisements, la tendance paraît irréversible : ces combustibles fossiles, sur lesquels l'humanité a fondé depuis des siècles son développement énergétique et qui fournissent aujourd'hui 80% de l'énergie dans le monde, vont être en situation d'épuisement à échéance prévisible. La prudence nous impose de les gérer de façon économique. Et aussi la solidarité nous commande de laisser disponible pour nos enfants et nos petits enfants une partie de ce capital au lieu de le consommer égoïstement pour nos intérêts immédiats.

Une grande menace environnementale à laquelle notre planète est confrontée est celle du réchauffement climatique provoqué par les activités humaines : production industrielle, combustion de pétrole, gaz et charbon..., liées à la production d'énergie. Sachant que la production d'électricité est responsable d'environ 27% [3] des émissions mondiales de CO₂ et ce chiffre ne diminuera pas compte-tenu du développement actuel mondial. Nous n'avons pris conscience de ce phénomène que tardivement, à la fin du siècle dernier, mais on ne peut plus en ignorer la gravité. Les principaux responsables de ce réchauffement sont le charbon, le gaz et le pétrole. Brûlés dans les véhicules automobiles, les installations de chauffage, les centrales électriques... ces combustibles fossiles relâchent dans l'atmosphère des gaz à effet de serre, principalement du CO₂.

Ceux-ci viennent s'ajouter aux gaz naturellement présents dans l'atmosphère et cet ajout artificiel, quoique proportionnellement limité, provoque un phénomène de saturation dans l'atmosphère. Les gaz à effet de serre vont piéger un surcroît de la chaleur solaire rayonnée par la terre et entraîner ainsi une hausse globale de la température. Cette hausse est d'ores et déjà +0,6°C au siècle dernier et pourrait atteindre de 1,5 à 6°C d'ici à 2100 [4]. Les conséquences potentielles en sont inquiétantes : fonte de la banquise et des glaciers, élévation du niveau des océans, inondation, sécheresses, désertification, bouleversement du régime de pluie, disparition d'espèces végétales et animales...

Si le réchauffement climatique est d'ores et déjà à l'œuvre, il nous reste la latitude d'influer sur son intensité afin de le maintenir pour qu'il ne s'aggrave pas ou qu'il reste dans des limites supportables. Pour cela, il nous faut impérativement diminuer nos émissions de CO₂.

Avec le développement du monde, c'est impératif de chercher d'autres moyens afin de répondre aux besoins énergétiques de plus en plus massifs hors ressources fossiles. L'énergie nucléaire est un choix possible. En 2006, les centrales nucléaires ont produit 2,6 milliards de MWh, soit 16% de l'électricité de la planète. En janvier 2013, 437 réacteurs [5] nucléaires étaient en service dans 31 pays et représentent une puissance installée totale de 372 GWe. La France, le Japon et les Etats-Unis détiennent d'environ 57% de la puissance nucléaire mondiale. Seize pays produisaient, en 2007, un quart de leur électricité dans des centrales nucléaires.

L'Agence de l'Energie Nucléaire (AEN) a effectué des projections de la puissance mondiale jusqu'en 2050 à partir de scénarios extrêmes dits « haut et bas » [6]. Le résultat est le suivant :

- d'ici 2050, la puissance nucléaire installée dans le monde devrait augmenter d'un facteur situé entre 1,5 et 3,8.
- Dans le scénario haut, la contribution du nucléaire à la production mondiale d'électricité passerait de 16% aujourd'hui à 22% en 2050.

Certains pays dépourvus de centrales nucléaires ont l'intention de rejoindre les pays dotés de parcs électronucléaires, mais ils ne devraient au mieux augmenter que de 5% environ la puissance nucléaire installée mondiale d'ici 2020.

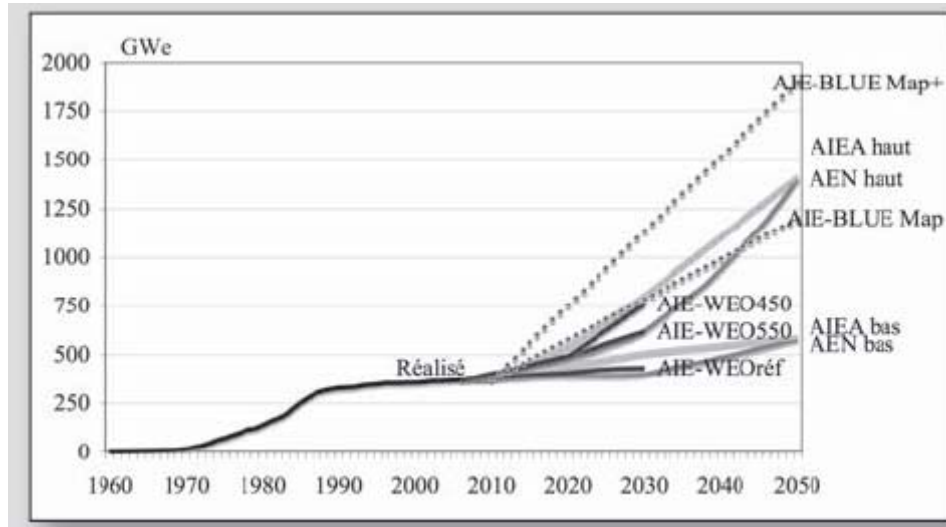


Fig. 1.1.2 : Projections sur le parc nucléaire mondial selon les agences intergouvernementales. Source : AEN (2008), AIEA (2010), AIE (2008, 2010) [6]

La filière nucléaire cause ainsi beaucoup de débats entre les risques et les avantages associés mais nous ne pouvons pas nier qu'il y a de plus en plus de pays qui choisissent l'énergie nucléaire comme stratégie d'indépendance énergétique. Quoi qu'il en soit, l'énergie nucléaire montre les avantages suivants :

- indépendance énergétique : l'épuisement de ressources fossiles contribue à monter le prix de l'énergie finale. L'énergie nucléaire assure une complète sécurité d'approvisionnement et met à l'abri des crises pouvant affecter les marchés de l'énergie. Le coût du minerai ne représente ainsi qu'environ 5 % du coût total de la filière. Par comparaison, le gaz représente 70 % à 90 % du coût de l'électricité d'une centrale à gaz et le charbon 35 % à 45 % du coût de l'électricité d'une centrale au charbon (Rapport de l'AEN [7]). La ressource limitée d'uranium relève d'un total de 4,75 MtU des ressources identifiées pour alimenter un parc de réacteurs de la taille de l'actuel pendant plus de 70 ans et en plus 10 MtU potentiellement des ressources non découvertes [8].
- électricité bon marché : le nucléaire permet la production d'une énergie bonne marché, moins coûteuse que celle produite à partir du gaz ou du charbon. Le coût de production du kWh nucléaire offre une grande garantie de stabilité sur le long terme, voir Fig. 1.1.3 (hors coût de démantèlement de centrale) [7]
- coût d'exploitation quasiment stable malgré le bouleversement de matériau initial.
- limitation du changement climatique : l'analyse montre que l'énergie nucléaire ne produit pratiquement pas de carbone [9].
- sécurité énergétique : les ressources de combustible viennent de plusieurs pays et peuvent servir au monde pour milliers d'années ; y compris les réacteurs de génération IV (dont moins de 100 ans sur la base des réacteurs de 2^{ème} génération) [10]. C'est-à-dire que si les nouvelles générations des réacteurs nucléaires peuvent utiliser l'uranium 238 comme le principal combustible.

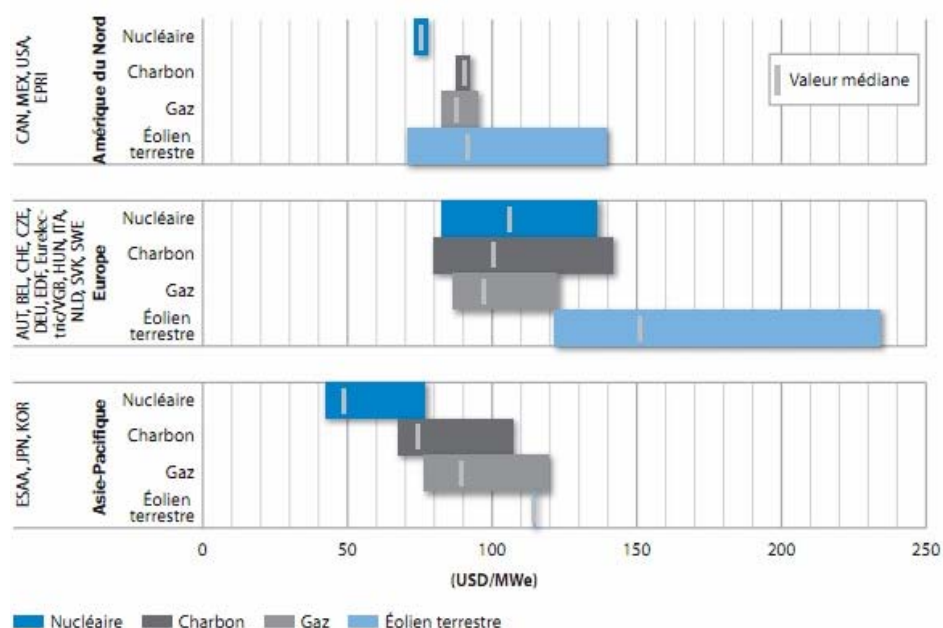


Fig. 1.1.3 : Fourchettes régionales des coûts moyens actualisés de l'électricité pour les centrales nucléaires, à charbon, à gaz et les parcs éoliens terrestres. [7]

Malgré tous ces avantages, il existe des inconvénients, ou plutôt des risques :

- **sûreté nucléaire** : c'est le premier critère qui interpelle quand on parle de l'énergie nucléaire. Le monde a passé million d'heures d'expérience d'exploitation de l'énergie nucléaire et la technologie s'améliore, donc puisse limiter les incidents pour les accidents nucléaires. Aujourd'hui, tout le pays qui possède l'énergie nucléaire, demande de vérification des systèmes de sûreté et en renforcer en cas nécessaire. Tout la technologie est utilisée pour limiter des incidents et accidents dans l'exploitation des centrales nucléaires, y compris les catastrophes naturelles à certain niveau.
- **stockage des déchets** : mise à part les Etats-Unis entre autres qui ont choisi de stocker définitivement tout le combustible sans séparation, quelques autres pays comme la France choisissent de recycler les déchets nucléaires, en particulier le plutonium est recyclé une fois sous forme de combustible d'oxyde mixte d'uranium et plutonium, le MOX. Les choix de la France en matière de gestion des déchets ne sont pas encore complètement arrêtés. Les recherches se poursuivent selon 3 axes définis par la loi Bataille en 1991 et prolonges par la loi de 2006 : axe 1 : séparation et transmutation, axe 2 : stockage en couche géologique, axe 3 : conditionnement et entreposage de longue durée.
- **non-prolifération et sécurité** : les armes nucléaires sont une menace pour la paix mondiale, un traité sur la non-prolifération des armes nucléaires a été signé par un certain nombre d'états en 1968. Son application est garantie par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique, l'AIEA [6].

Les accidents, les menaces existeront toujours et nous devons réduire la possibilité de leur occurrence. Afin d'améliorer la sûreté, la technologie et le rendement des réacteurs nucléaires de nouveaux concepts de réacteur du futur sont à l'étude avec un accent sur ces critères, accompagnés d'une gestion optimisée des déchets et de la lutte contre la prolifération.

Les réacteurs futurs régénérateurs en cycle U/Pu permettront de produire du plutonium 239 grâce à la capture neutronique d'uranium 238 fertile, ce qui peut être proliférant.

Actuellement, les réacteurs de type Candu (Canadian Deuterium Uranium) peuvent produire du plutonium à l'aide de leur mode de rechargement en ligne sans arrêt du réacteur. Tout cela est dangereux pour la paix d'humanité car il peut-être conduit à une fabrication d'une bombe nucléaire et le contrôle de ces étapes dans les centrales nucléaire devient très important selon l'Agence International de l'Energie Nucléaire (AIEA).

1.2. Décroissance bêta des produits de fission

1.2.1. Généralités

Suite aux réactions en chaîne de fission dans le combustible, principalement sur les noyaux fissiles ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu , ainsi que l' ^{238}U dans les réacteurs nucléaires thermiques actuels, des produits de fission sont produits. Ces noyaux, créés par la fission nucléaire, sont riches en neutrons et donc radioactifs. Pour rejoindre la vallée de stabilité, ils se désintègrent par décroissance β^- selon le processus suivant en émettant des antineutrinos électroniques $\bar{\nu}_e$:

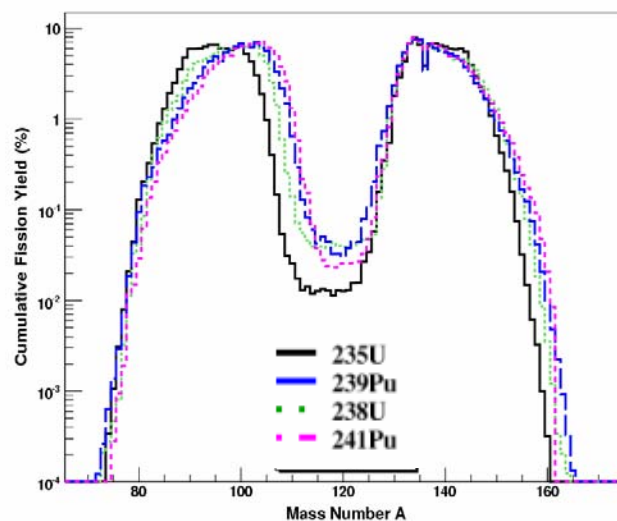


Fig. 1.2.1 : Distribution des produits de fission en fonction des quatre noyaux principaux [11].

La figure 1.2.1 montre que les distributions des produits de fission créés après la fission des 4 noyaux cités ci-dessus sont différentes, en raison de leurs propriétés nucléaires intrinsèques.

Les fissions nucléaires créent non seulement des produits de fission, des photons (gammas prompts de fission) mais aussi des neutrons (en moyenne de l'ordre de 2.5 neutrons) très importants qui, permettent le maintien de la réaction en chaîne dans les réacteurs, et qui sont une partie absorbés par les matériaux de structure et le combustible dans le réacteur. Les structures peuvent également absorber les rayonnements gamma (réactions photo-nucléaires).

Lors de la décroissance bêta des produits de fission, soit ceux-ci décroissent directement vers l'état fondamental du noyau fils, soit ils alimentent des états excités intermédiaires du

noyau fils. Celui-ci va rejoindre son état fondamental en émettant des rayonnements gamma d'énergie correspondante au niveau excité. Ces gammas s'appellent les gammas retardés (sous-entendu par la décroissance bêta) et représentent en moyenne une énergie dégagée de 7,2 MeV par réaction de fission [12]. Cette énergie est très importante pour la sûreté d'un réacteur nucléaire, en particulier juste après son arrêt. Cette énergie est une source de chaleur importante qu'il faut dissiper. Cette chaleur dégagée, produite par les rayonnements bêta et gamma précédents, s'appelle la puissance résiduelle, et nous nous intéresserons à cette quantité dans le paragraphe 1.2.3. Notons que la décroissance bêta peut alimenter des niveaux excités du noyau fils au-dessus du seuil d'émission d'un neutron dans ce dernier. Dans ce cas il y a émission d'un neutron retardé par la décroissance bêta. Ce sont des neutrons dits retardés, dont l'émission est cruciale pour le pilotage d'un réacteur.

L'énergie emportée par les antineutrinos des décroissances bêta représente environ 9.6 MeV par fission [13]. Cette énergie est perdue pour le réacteur puisque les antineutrinos s'échappent du cœur du réacteur sans interagir. Nous allons nous intéresser à ces antineutrinos également par la suite (paragraphe 1.2.4), puisque nous allons voir que leur détection pourrait servir pour surveiller un réacteur nucléaire.

Nous voyons d'ores et déjà que l'origine des antineutrinos des réacteurs et de la puissance résiduelle des réacteurs à l'arrêt provient des décroissances bêta des produits de fission. Si l'on souhaite améliorer nos connaissances et mieux évaluer ces deux quantités, il sera donc nécessaire de s'intéresser aux processus de décroissance bêta de ces noyaux, et éventuellement de réaliser de nouvelles mesures de leurs caractéristiques radioactives. Nous aborderons ce point dans le paragraphe 1.2.5.

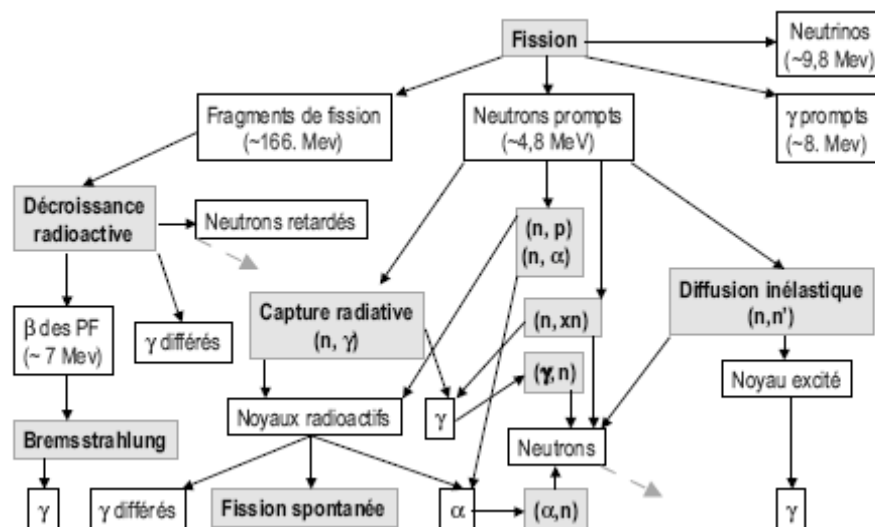


Fig. 1.2.2 : Les différentes sources de rayonnements issues lors de la fission. [12]

1.2.2. Décroissance bêta des noyaux

1.2.2.1. Introduction de désintégration bêta

La désintégration bêta est l'un des mécanismes les plus communs de désintégration nucléaire dans la nature. Ce processus, dominé par l'interaction faible, est responsable de la conversion d'un type de nucléons (protons ou neutrons) dans un autre. Selon le type de désintégration bêta, un proton se transforme en un neutron ou un neutron en proton. Le premier type est connu sous le nom de décroissance bêta⁺ et le second type est appelé décroissance bêta⁻. Il y a également un troisième type de décroissance, semblable à la décroissance bêta⁺, mais dans ce cas, le proton capture un des électrons du cortège atomique avant de se convertir en un neutron. Ce troisième type est la capture électronique. Dans tous ces processus, le nombre de masse reste constant, mais Z et N changent d'une unité.

Le processus de désintégration bêta comprend également l'émission de deux particules supplémentaires, selon le type, un électron (ou positron) et un neutrino (ou antineutrino) :

- décroissance bêta⁻ : $n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e$
- décroissance bêta⁺ : $p \rightarrow n + e^+ + \nu_e$
- capture électronique (CE) : $p + e^- \rightarrow n + \nu_e$

Pour que l'un de ces processus puisse avoir lieu, la décroissance doit satisfaire la conservation de l'énergie. Cela signifie que l'énergie libérée dans la désintégration bêta, la valeur du Q de réaction, doit être positive ou alors il faut fournir de l'énergie pour qu'elle ait lieu. La valeur Q est définie comme la différence de masse entre la somme des masses initiales et la somme des masses finales de la désintégration.

$$Q_{\beta^-} = [M({}_Z^AX_N) - M({}_{Z+1}^AX_{N-1})]c^2 = E_{\beta^-} + E_{\bar{\nu}} + E_{ex} \quad 1.2$$

$$Q_{\beta^+} = [M({}_Z^AX_N) - M({}_{Z-1}^AX_{N+1})]c^2 = E_{\beta^+} + E_{\nu} + E_{ex} + 2mec^2 \quad 1.3$$

$$Q_{CE} = [M({}_Z^AX_N) - M({}_{Z-1}^AX_{N+1})]c^2 = E_{\nu} + B_i \quad 1.4$$

Dans ces équations, $M({}_Z^AX_N)$, $M({}_{Z+1}^AX_{N-1})$ et $M({}_{Z-1}^AX_{N+1})$ sont les masses atomiques des noyaux père et fils respectivement, c est la vitesse de la lumière, E_{β} est l'énergie de la particule bêta, E_{ν} est l'énergie du neutrino (antineutrino), E_{ex} est l'énergie d'excitation du noyau fils et B_i est l'énergie de liaison de l'électron en orbite I (K, L, ...) à partir de laquelle il a été capturé.

Ensuite, si nous nous rappelons les relations précédentes, le processus de décroissance bêta⁺ est limité par un seuil en énergie de 1022 keV pour pouvoir se produire. Au-dessous du seuil, seule la capture électronique est possible. Sur le côté riche en neutrons de la vallée de stabilité, seul le processus de décroissance bêta⁻ est possible.

1.2.2.2. Lois de conservation et les règles de sélection

Le processus de décroissance bêta obéit aux lois de conservation et aux règles de sélection des spins et parités. Elles sont liées aux propriétés intrinsèques des particules émises dans la désintégration, en particulier le spin S , et le moment angulaire L transféré :

- Lorsque la particule bêta (électron ou positron) et le neutrino (ou antineutrino) sont émis avec moment angulaire orbital zéro, ce qui est appelé l'approximation permise, seulement des spins intrinsèques de ces particules doivent être pris en compte dans la transition entre l'état initial et final ($\pi_i = \pi_f$). De cette manière, on peut définir deux types de transitions selon que les spins des particules sont parallèles ou antiparallèles, c'est à dire, le total $S = 1$ ou total $S = 0$:
 - Le spin total $S = 1$: dans ce cas, la variation totale de spin nucléaire entre l'état initial et final, ΔJ , peut valoir 0 ou 1. La transition est appelée transition de Gamow-Teller.
 - Le spin total $S = 0$: dans ce cas, ΔJ doit être 0 et la transition est connue sous le nom de transition de Fermi.
- Dans le cas où les deux particules sont émises avec $L \neq 0$, la décroissance est appelée interdite. Ce type de décroissance se produit avec moins de probabilité que la décroissance permise. L'ordre de l'interdiction augmente avec la valeur de L . Pour chaque décroissance interdite, deux types de transition définis ci-dessus peuvent se produire, et la parité entre l'état initial et final ne peut pas être la même.

Soient les moments angulaires initiaux et finaux \vec{I}_i et \vec{I}_f respectivement, on peut généraliser ces règles pour tout L :

$\vec{I}_f = \vec{I}_i + \vec{L}$ est la transition de Fermi.

$\vec{I}_f = \vec{I}_i + \vec{L} + \vec{1}$ est la transition de Gamow-Teller.

$\pi_i = \pi_f (-1)^L$ est la relation entre la parité π et le moment angulaire.

1.2.2.3. Caractérisation de désintégration bêta

Une façon de comparer les propriétés de désintégration bêta dans les différents noyaux est d'utiliser la valeur de la quantité $\log ft$ [14]. Elle est définie comme suit:

$$ft = \frac{C}{\langle F \rangle^2 + \left(\frac{g_A}{g_V} \right)^2 \langle GT \rangle^2} \quad 1.5$$

Dans l'équation 1.5, C est une constante, g_V et g_A sont les constantes du vecteur de couplage faible et du vecteur de couplage axial. f est appelée la fonction statistique ou le facteur d'espace des phases contenant la dépendance énergétique de la transition. Cette équation montre la relation entre la demi-vie partielle τ avec les éléments de matrice nucléaire Fermi et Gamow-Teller :

$$\langle F \rangle = \left\langle \psi_f \sum_{k=1}^A \tau_k^\pm | \psi_i \right\rangle \quad 1.6$$

$$\langle GT \rangle = \left\langle \psi_f \sum_{k=1}^A \vec{\sigma}_k \tau_k^\pm | \psi_i \right\rangle \quad 1.7$$

Les variations dans les valeurs $\log ft$ doivent être dues à des différences dans les éléments de la matrice nucléaire et, donc, à des différences dans les fonctions d'onde nucléaires.

Le carré des deux éléments de la matrice nucléaire mentionnée ci-dessus est appelé la force Fermi et Gamow-Teller, $B(F)$ et $B(GT)$ respectivement. La valeur ft peut être réécrite avec ces forces comme suivant :

$$ft = \frac{C}{B(F) + \left(\frac{g_A}{g_V} \right)^2 B(GT)} \quad 1.8$$

En raison de la règle de sélection en isospin, la désintégration de Fermi est supprimée sur la majeure partie de la charte nucléaire. Par la suite, nous considérerons seulement le cas particulier de pures transitions de Gamow-Teller. Plutôt que le $B(GT)$, nous allons utiliser la distribution $S_\beta(E_x)$. Cette distribution, fonction de l'énergie d'excitation E_x , est liée à la distribution normalisée de bêta, appelée aussi l'intensité bêta ou I_β , observable expérimentale :

$$S_\beta(E_x) = \frac{I_\beta(E_x)}{f(Q_\beta - E_x)T_{1/2}} \quad 1.9$$

où $T_{1/2}$ est la demi-vie de désintégration bêta, et $f(Q_\beta - E_x)$ est la fonction statistique de Fermi, qui dépend à la fois du type de processus bêta et de l'énergie disponible de désintégration $Q_\beta - E_x$. Toutes les variables impliquées dans l'équation 1.9 peuvent être mesurées expérimentalement. $S_\beta(E_x)$ est définie comme une quantité moyenne qui représente la valeur moyenne pour toutes les transitions survenant à l'intérieur d'un certain niveau d'énergie ΔE_x à l'énergie d'excitation E_x .

$$S_\beta(E_x) = \frac{1}{T_{1/2}} \sum_{E_x \in \Delta E_x} \frac{1}{\Delta E_x} \frac{I_\beta(E_x)}{f(Q_\beta - E_x)T_{1/2}} \quad 1.10$$

Cette quantité est introduite afin de faire face à la situation où la densité d'un niveau du noyau fils dans la désintégration bêta est trop grande pour distinguer les différents niveaux, mais il est applicable lorsque la densité du niveau est faible aussi. $B(GT)$ et la force bêta sont liés par l'équation:

$$S_{\beta}(E_x) = \frac{1}{6147 \pm 7} \left(\frac{g_A}{g_V} \right)^2 \sum_{E_f \in \Delta E_x} \frac{1}{\Delta E_x} B(GT)_{i \rightarrow f} \quad 1.11$$

En outre, la valeur intégrale de $S_{\beta}(E_x)$ est exprimée en termes de valeur totale ft , défini comme suivant :

$$total\ ft = \frac{1}{\sum_{E_x} S_{\beta}(E_x) \Delta E_x} \quad 1.12$$

1.2.2.4. Relations entre la désintégration bêta et les applications autour des réacteurs nucléaires

Les mesures de distribution de force bêta ne sont pas utiles seulement pour la compréhension fondamentale de la structure nucléaire. Ils sont également d'intérêt dans plusieurs applications [15], dans la technologie nucléaire en particulier. La désintégration bêta est responsable d'environ 7% de l'énergie libérée dans un réacteur nucléaire en exploitation ou en condition de fonctionnement normal et essentiellement de toute l'énergie après l'arrêt du réacteur. C'est la puissance résiduelle, dont dépend la conception de la centrale nucléaire et qui diminue en fonction du temps après l'arrêt.

Indépendamment des types de réacteurs considérés, il y a un certain nombre de critères de conception importants qui demandent des connaissances précises sur la production de chaleur de l'ensemble du réacteur ou d'un élément combustible individuel, dans les quelques secondes ou les centaines de jours, voire les années, suite à l'arrêt du réacteur. Certains de ces critères, pour lesquels la puissance résiduelle doit être prise en compte [16], sont :

- Le contrôle des systèmes de refroidissement: tout système de refroidissement d'urgence du cœur doit être en mesure d'évacuer ou d'extraire la production de chaleur à court terme du combustible irradié dans le cœur du réacteur ;
- Le blindage demandé sur les voies de transport lorsque le combustible irradié du réacteur est transféré à partir du réacteur à l'usine de retraitement chimique ;
- Le stockage des déchets radioactifs extraits de combustible irradié lors du retraitement.

Un défaut dans l'évacuation de cette chaleur peut provoquer une hausse de température du cœur du réacteur et donc une fusion possible du cœur avec la conséquence des accidents nucléaires, comme dans l'accident nucléaire de Three Miles Island, ou de Fukushima récemment en 2011.

Dans cette thèse, nous nous intéressons, à la fois par un travail de simulation et un travail expérimental, à la puissance résiduelle des réacteurs dans les premiers milliers de secondes après l'arrêt, et à l'émission en antineutrinos des réacteurs, car leur détection pourrait constituer un nouvel outil de lutte contre la prolifération des armes nucléaires. On voit bien à travers l'introduction ci-dessus le lien fort qui existe entre ces deux thématiques, de par leur origine commune, et de par leur intérêt à long terme pour les réacteurs du futur, avec un aspect de sûreté d'une part et un aspect que l'on pourrait qualifier de stratégique d'autre part. Dans la suite, nous allons détailler un peu plus les caractéristiques de la puissance résiduelle dans un premier temps, puis celles des antineutrinos émis par les

réacteurs dans un second temps. Enfin nous parlerons des expériences de physique nucléaire qui peuvent aider à connaître plus précisément ces caractéristiques dans le futur.

1.2.3. Puissance résiduelle émise après l'arrêt d'un réacteur nucléaire

Quand le réacteur est arrêté, qu'il s'agisse de procéder au rechargement, à la maintenance, d'un arrêt d'urgence accidentel, il est nécessaire de refroidir le cœur pendant une période assez longue afin de dissiper la chaleur dégagée par le combustible irradié.

Les réactions en chaîne pour maintenir le fonctionnement du réacteur sont interrompues mais les éléments radioactifs présents dans le combustible continuent à dégager de la chaleur : c'est la puissance résiduelle, provenant essentiellement de l'activité des produits de fission. La puissance résiduelle est un problème crucial pour la sûreté, mais aussi la radioprotection (exposition éventuelle des travailleurs et du public) et la tenue des matériaux (tenue des matériaux sous irradiation, possibilité de radiolyse) dans les réacteurs à eau légère, mais aussi dans les futurs concepts de réacteurs nucléaires.

	en%	REP 900	REP 1300
Avant l'arrêt	100%	2700 MW	3900 MW
Après 1 seconde	7%	190 MW	270 MW
Après 1 minute	5%	135 MW	195 MW
Après 1 heure	1,50%	40 MW	58 MW
Après 1 jour	0,60%	16 MW	24 MW
Après 1 semaine	0,30%	8 MW	12 MW
Après 1 mois	0,15%	4 MW	6 MW

Tableau 1.2.1 : Puissance thermique typique dégagée avant et après l'arrêt du réacteur. [17]

Dans le tableau 1.2.1, on peut voir les valeurs très importantes de la puissance résiduelle dégagée la première seconde après l'arrêt du réacteur et la première minute, donnant respectivement 7% et 5% de la puissance nominale thermique du réacteur. La puissance résiduelle demeure encore de l'ordre de 1,5% après une heure, puis elle décroît exponentiellement. Il faut donc refroidir beaucoup dans les premiers instants mais aussi un peu durant de longues durées et c'est la raison pour laquelle, en cas de situations accidentelles, la puissance résiduelle est d'abord évacuée par les systèmes d'évacuation si les circuits de refroidissement ne sont pas endommagés par l'accident. Dans le cas contraire, le cœur du réacteur risque de fondre comme dans les cas survenus à Three Mile Island et tout récemment à Fukushima.

La quantité de matières radioactives présentes dans le réacteur au moment de l'arrêt dépend du niveau de puissance à laquelle le réacteur a fonctionné et du temps passé à ces niveaux de puissance. La valeur de la puissance résiduelle est très significatif : un réacteur nucléaire en fonctionnement à pleine puissance pendant 3 ou 4 jours avant d'arrêt dégage beaucoup plus de chaleur qu'un réacteur en fonction à faible puissance durant la même période.

La puissance résiduelle provient principalement des sources suivantes :

1. Produits de fission instables, qui se désintègrent par β^- , (β^+) et γ émission jusqu'aux isotopes stables.

2. Actinides instables qui sont formés par réactions successives de capture et des désintégrations bêta des isotopes d'uranium et de plutonium présents dans le combustible.
3. Fissions induites par neutrons retardés qui dépendent de l'anti-réactivité injectée (bore soluble, barre de contrôle-commande).
4. Matériaux de structure et de revêtement dans le réacteur qui auraient pu devenir radioactifs.

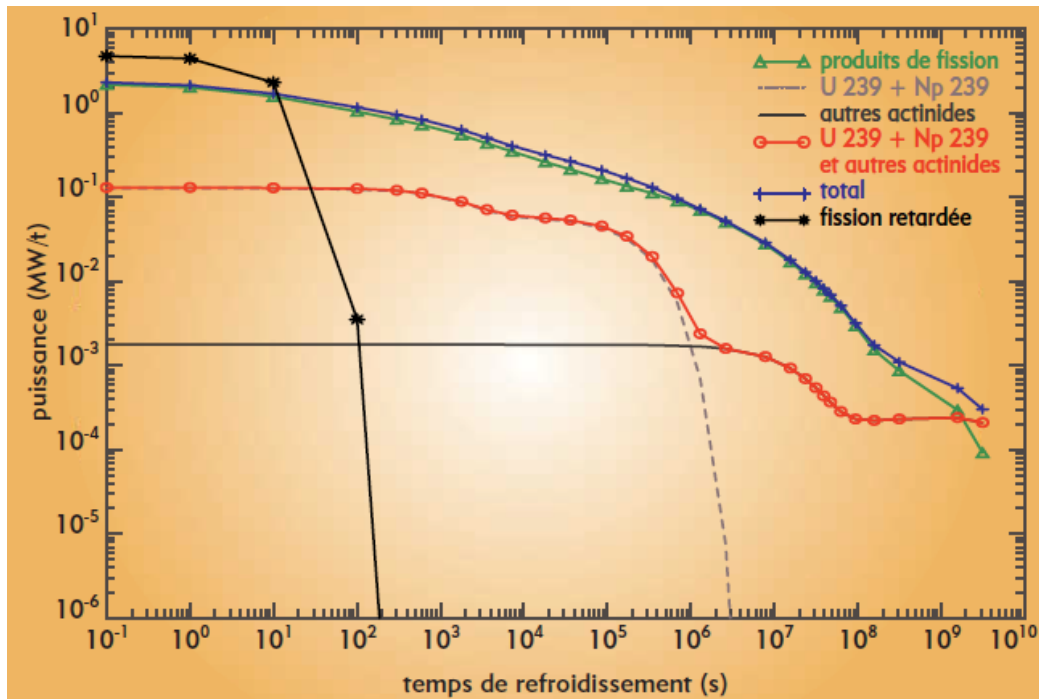


Fig. 1.2.3 : Puissance résiduelle du combustible UOx (3.25% ^{235}U) pour un taux de combustion (burnup) de 33GWj/t en fonction du temps de refroidissement dans un REP 900 [18].

La fig. 1.2.3 présente l'évolution temporelle de la puissance résiduelle pour un combustible UOx enrichi à 3.25% de taux de combustion 33000MWj/t. Dans les 10 premières secondes ce sont les fissions retardées qui dominent, puis les produits de fission jusqu'à 100 ans après l'arrêt. Après cette période seulement, les actinides deviennent plus importants que les produits de fission. L' ^{239}U et le ^{239}Np contribuent pour 5 à 10% de la puissance totale jusqu'à 10 jours de refroidissement. Leur contribution est plus importante dans le cas de combustibles à plus hauts taux de combustion, et pour un combustible de type MOX (oxyde mixte d'uranium et de thorium). Pour du combustible UOx en conditions nominales d'utilisation, la puissance résiduelle immédiatement après arrêt représente 6% de la puissance nominale, dont 94% sont dus aux fragments de fission, 5.6% à l' ^{239}U et ^{239}Np et 0.12% aux autres actinides (sans compter les fissions retardées).

La production de chaleur due à la fission de neutrons retardés induits est généralement négligée car elle dépend de l'anti-réactivité injectée qui va absorber tous les neutrons induits des fissions. L'activation des éléments légers dans des matériaux de structure joue un rôle seulement dans des circonstances particulières, et est généralement exclue dans des analyses de puissance résiduelle.

Pour résumer, après l'arrêt d'un réacteur nucléaire, la décroissance radioactive des produits de fission, actinides (et des produits d'activation) produisent de la chaleur qui doit être retirée du système.

1.2.3.1. Calcul de la puissance résiduelle

La puissance résiduelle peut être déterminée par deux méthodes: des mesures expérimentales directes ou des calculs théoriques. Bien que les calculs puissent être préférés en raison de leur généralisation possible, ils doivent être vérifiés/validés avec des mesures expérimentales afin d'assurer la fiabilité de la méthode de calcul. C'est la raison pour laquelle les deux méthodes sont considérées comme complémentaires.

En ce qui concerne la méthode de calcul théorique, elle est basée sur l'inventaire des noyaux créés pendant le processus de fission et après l'arrêt, et leurs caractéristiques de désintégration. La méthode la plus courante utilisée pour calculer théoriquement la puissance résiduelle est le calcul par sommation. Cette méthode consiste dans la somme des produits des activités de tous les nucléides avec les valeurs d'énergie moyennes des rayonnements (α , β , γ) libérés par la désintégration de ce radionucléide à chaque temps de refroidissement ou au temps après l'arrêt du réacteur. Mathématiquement, la puissance résiduelle est décrite par les équations suivantes :

$$H_{\beta}(t) = \sum_i^{PFs} E_{\beta}^i \lambda_i N_i(t) \quad 1.13$$

$$H_{\gamma}(t) = \sum_i^{PFs} E_{\gamma}^i \lambda_i N_i(t) \quad 1.14$$

où $H_{\beta}(t)$ et $H_{\gamma}(t)$ représentent la chaleur de décroissance des composants correspondant au respectivement bêta et gamma à un temps de refroidissement t , E_{β}^i et E_{γ}^i sont l'énergie moyenne libérée du bêta et gamma respectivement par désintégration du nucléide i , λ_i est la constante de désintégration du nucléide i et $N_i(t)$ est le nombre de nucléides i au moment de refroidissement t . La puissance résiduelle provenant des émissions de particules alpha se calcule de la même façon. Dans la suite, nous nous intéresserons seulement à la puissance résiduelle provenant de la radioactivité bêta des produits de fission.

Le nombre de nucléides $N_i(t)$ au temps t après l'arrêt peut être exprimé en fonction de son prédécesseur dans la désintégration par l'équation:

$$\frac{d}{dt} N_i = -\lambda_i N_i + \lambda_{i-1} N_{i-1} \quad 1.15$$

Cela signifie que le nombre de nucléides, une fois la réaction en chaîne arrêtée, dépend du nombre de nucléides qui existent dans des conditions d'exploitation, et ce nombre peut être obtenu en résolvant le système d'équation de Bateman :

$$\frac{d}{dt} N_i = -(\lambda_i + \sigma_i \phi) N_i + \sum_j f_{j \rightarrow i} (\lambda_j N_j) + \sum_k g_{k \rightarrow i} (\sigma_k \phi N_k) + \sum_f Y_{if} \sigma_f \phi N_f \quad 1.16$$

où :

N_i : le nombre de nucléides i

λ_i : constante de désintégration de nucléide i

σ_i : section efficace du nucléide i avec les neutrons

ϕ : flux des neutrons

$f_{j \rightarrow i}$: rapport de branchement de l'isotope j vers l'isotope i

$g_{k \rightarrow i}$: rapport de branchement de l'isotope k vers l'isotope i

Y_{if} : rendement de fission (fission-yield) de l'isotope f vers l'isotope i

Toutes les informations initiales (les sections efficaces, le rendement de fission, la durée de vie, l'énergie moyenne bêta et gamma libérée dans la désintégration et les sections efficaces de capture) sont extraites de bases de données nucléaires. Ces bases de données doivent contenir des données précises afin d'effectuer les calculs avec confiance. Toutefois, il existe des écarts entre la puissance résiduelle calculée et mesurée.

L'erreur à un sigma sur les temps courts de refroidissement est actuellement dans le cas de la puissance résiduelle dissipée après l'arrêt d'un réacteur de type REP de l'ordre de 10% [18] (voir fig. 1.2.4). Des études ont été réalisées pour connaître les sources possibles des écarts et tester la sensibilité des calculs par sommation aux incertitudes dans les données ([19], [20]). Ainsi, les rendements de fission, les sections efficaces des neutrons et des données de décroissance ont été évalués en concluant que la principale source de divergence pour un combustible UOx est liée aux données disponibles de désintégration bêta pour de nombreux produits de fission de courte durée. Il s'agit d'ailleurs également d'un enjeu économique pour les industriels, puisque cette incertitude impose d'attendre plus longtemps avant de déplacer les assemblages du cœur vers la piscine du réacteur, ce qui entraîne une perte de production d'énergie.

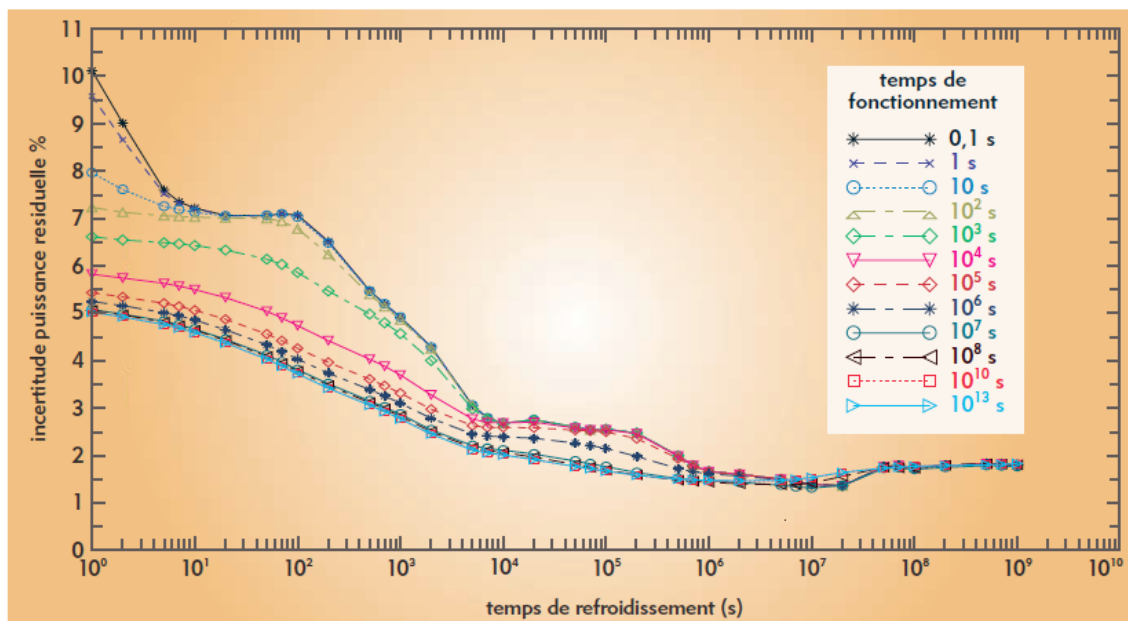


Fig. 1.2.4 : Evolution temporelle des incertitudes sur la puissance résiduelle d'un REP en fonction du temps de refroidissement, extrait de la référence [18].

Nous nous intéresserons notamment dans cette thèse à la puissance résiduelle dissipée dans les 10000 premières secondes après l'arrêt d'un réacteur, et en particulier à réduire l'incertitude associée aux données de décroissances des produits de fission par de nouvelles mesures.

1.2.3.2. Effet Pandémonium

Beaucoup de produits de fission de courte durée sont très mal caractérisés, car leurs spectres de rayons gamma ont été mesurés de façon incomplète ou non mesurés. Ce fait est particulièrement vrai pour les noyaux avec des schémas de décroissance compliqués et de grandes valeurs Q_β , lorsque la spectroscopie conventionnelle des rayons gamma à haute résolution est utilisée. Ce type de spectroscopie utilise des détecteurs en Germanium de haute résolution. La détermination de l'intensité de bêta avec cette technique procède en deux étapes. Premièrement, le niveau dans le noyau fils est construit sur la coïncidence gamma-gamma. Deuxièmement, l'intensité d'alimentation de chaque niveau est obtenue par l'intensité des rayons gamma. Il a été reconnu [18] que cette technique peut induire un biais sur la mesure de la réponse bêta à haute énergie d'excitation pour les raisons suivantes :

- La fragmentation élevée de l'intensité I_β à ces énergies. Lorsque la décroissance procède à des niveaux très excités où la densité de niveau est tellement élevée que le spectre des niveaux dans le noyau pourrait être considéré comme presque continu [21], la probabilité de réponse est répartie sur plusieurs niveaux. Il y a de grandes chances que les multiples gammas émis soient noyés dans les front Compton associés aux niveaux de plus basse énergie mesurés lorsque l'on utilise des détecteurs au Ge.
- L'efficacité de détection des détecteurs Ge est faible pour les rayons gamma de haute énergie (de l'ordre de ??% à 4 MeV). La probabilité que la cascade de décroissance comprenne un gamma qui échappe à la détection est élevée.
- Le fait que l'état excité peut se désexciter par des chemins différents.

Dans une telle situation, la décroissance vers les hautes énergies d'excitation n'est pas observée et incorrectement attribuée à des niveaux plus bas. Le problème expérimental est appelé effet Pandémonium [22]. Cet effet peut avoir des conséquences directes pour les calculs de la chaleur de décroissance parce que l'énergie libérée par les rayons bêta (ou l'énergie moyenne de rayons bêta, \bar{E}_β) peut être surestimée et l'énergie des rayons gamma (ou l'énergie moyenne de rayons gamma, \bar{E}_γ) peut être sous-estimée comme le montre la fig. 1.2.5. Six branches de décroissance (branches dénommées $\alpha_5 \dots \alpha_{10}$ sur le schéma) ne sont pas détectées, ce qui aboutit à une sous-estimation de l'énergie de décroissance gamma.

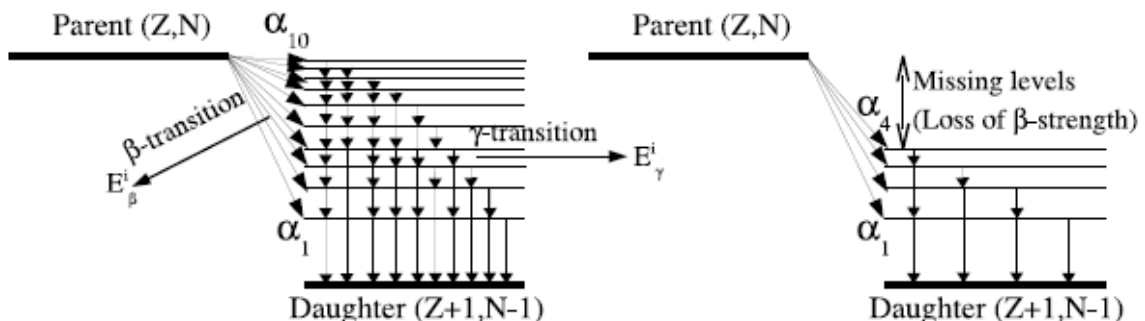


Fig. 1.2.5 : Illustration de l'effet de Pandémonium pour la décroissance bêta et gamma.

Les incertitudes sur la puissance résiduelle dues aux bases de données sont illustrées dans la fig. 1.2.6 par les différences observées dans les prédictions établies avec les

différentes bases de données. Cette incertitude est expliquée au moins en partie par l'effet Pandémonium [22], ce qui sous-estime l'énergie de décroissance gamma mais surestime celle de décroissance bêta.

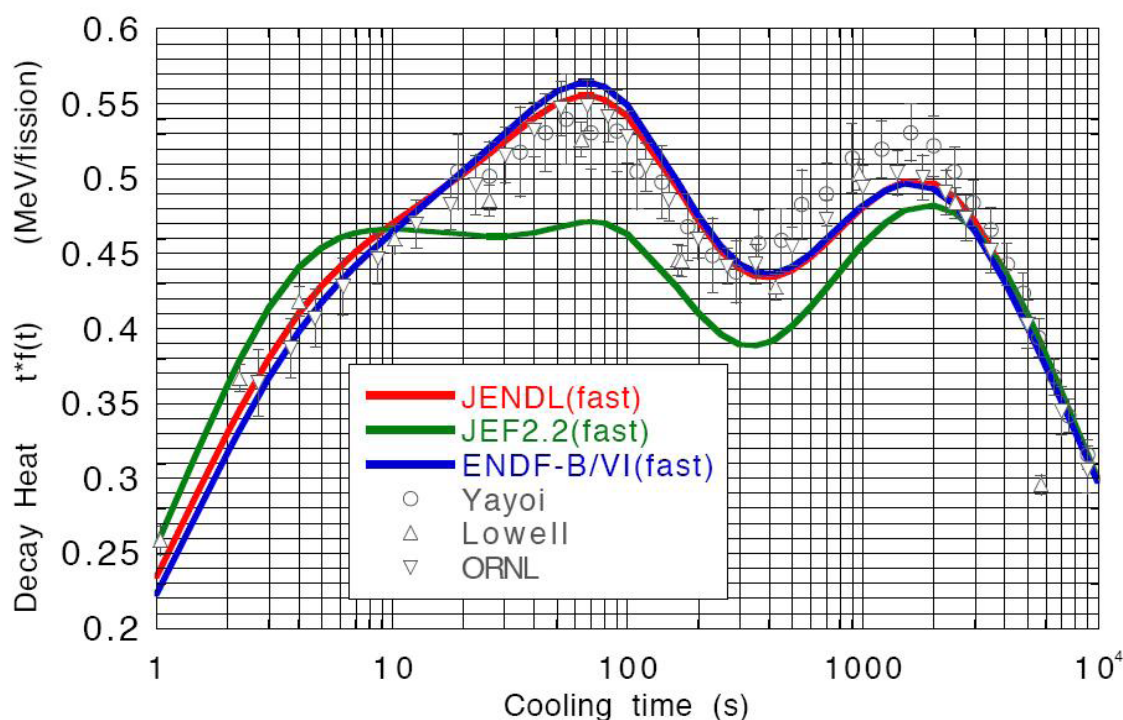


Fig. 1.2.6 : Comparaison de puissance résiduelle du ^{239}Pu pour plusieurs bases de données et pour différentes expériences.

Aujourd'hui, plusieurs études sont réalisées pour corriger les bases de données afin d'éliminer ce biais. La méthode TAGS (Total Absorption Gamma-ray Spectrometer) est une méthode expérimentale alternative à l'emploi des détecteurs au Ge qui permet de s'affranchir de l'effet Pandémonium. Avant de détailler cette méthode et les derniers résultats expérimentaux associés, nous allons introduire ces particules « passe-muraille » émises en grand nombre par les réacteurs nucléaires ; les antineutrinos électroniques.

1.2.4. Introduction sur les antineutrinos des réacteurs

Les antineutrinos sont les anti-particules des neutrinos. Les neutrinos sont des particules élémentaires appartenant à la famille des leptons. Il en existe donc trois saveurs, une pour chaque famille de leptons :

- le neutrino électronique ou neutrino-électron ν_e ,
- le neutrino muonique ou neutrino-muon ν_μ ,
- le neutrino tauique ou neutrino-tau ν_τ .

Les connaissances fondamentales sur les neutrinos de particules se sont beaucoup accrues pendant la dernière décennie. Plusieurs expériences ont démontré que les neutrinos sont des particules massives et peuvent, par conséquent, osciller d'une saveur leptonique à une autre. Plusieurs expériences ont montré la cohérence des résultats qui permettent de déterminer la plupart des paramètres gouvernant ces oscillations [23].

Différentes sources de neutrinos ont été étudiées et utilisées lors de ces recherches, telles que les neutrinos atmosphériques créés par les rayons cosmiques, les faisceaux de neutrinos créés avec des accélérateurs, les neutrinos solaires et les (antis)neutrinos des réacteurs. Ces trois sources de neutrinos ont permis de mesurer, en fonction de leur énergie et de la distance des sources à laquelle les détecteurs étaient placés, les différents paramètres gouvernant les oscillations.

L'angle θ_{13} peut être étudié avec des expériences utilisant les centrales nucléaires comme une intense source d'antineutrinos électroniques, découlant de la désintégration bêta des produits de fission créés par le processus de fission dans le combustible du réacteur [24]. En particulier, une limite supérieure sur l'angle θ_{13} était donnée par les résultats expérimentaux de Chooz [25].

L'expérience Double Chooz s'est installée sur le site de Chooz dans les Ardennes. L'objectif est de mesurer θ_{13} avec deux détecteurs identiques placés l'un à 400m (détecteur proche) et l'autre à 1050m (détecteur lointain) des cœurs de la centrale de Chooz. L'utilisation de deux détecteurs identiques doit permettre l'élimination de la plupart des erreurs systématiques, et en particulier l'élimination de l'erreur associée au calcul du spectre en énergie des antineutrinos émis par la centrale. L'expérience Double Chooz est actuellement dans sa première phase de prise de données. Seul le détecteur lointain prend des données (depuis avril 2011) et les résultats ont été comparés à un calcul du spectre en énergie des antineutrinos, auquel l'équipe de SUBATECH est l'un des principaux contributeurs. Les résultats de l'expérience ont été rendus publics en novembre 2011 [26]. Ce résultat a été confirmé depuis par l'expérience Daya Bay [27] et l'expérience Reno [28]. Le dernier résultat de l'expérience Double Chooz [29], dans laquelle le groupe ERDRE est fortement impliqué, fait état de 8249 antineutrinos électroniques mesurés sur 227.93 jours de prise de données (live time) dans le détecteur lointain situé à 1050m des deux réacteurs de type N4 de la centrale de Chooz, exposé à 33.71 GW-tonne-ans (puissance réacteur x masse détecteur x lifetime). On attendrait 8937 événements dans l'hypothèse d'un angle de mélange θ_{13} nul. Le déficit est interprété comme une preuve de disparition d'antineutrinos électroniques. A l'aide d'une analyse en normalisation et en forme du spectre en énergie des antineutrinos mesurés, on obtient la valeur suivante : $\sin^2 2\theta_{13} = 0.109 \pm 0.030(\text{stat}) \pm 0.025(\text{syst})$. Les données excluent l'hypothèse de zéro-oscillation à 99.9% CL (3.1σ).

Pendant les recherches fondamentales utilisant les antineutrinos des réacteurs, l'idée est née que les antineutrinos produits dans les réacteurs pourraient porter une image directe du cœur à l'extérieur du réacteur, et qu'ils pourraient être utilisés pour un contrôle à distance des centrales nucléaires [30]. En effet, de grandes quantités d'antineutrinos sont produites dans le réacteur grâce à la décroissance β^- des produits de fission riches en neutrons et environ 10^{21} $\bar{\nu}_e$ / s sont émis par un réacteur de 1 GWe via ce processus :



où un neutron du noyau initial est converti en un proton, un électron et un antineutrino électronique. Les fissions, mais aussi les produits de fission (PF) contribuent à la puissance thermique (P_{th}) du réacteur sauf les antineutrinos, qui s'échappent librement du réacteur en raison de leur section efficace d'interaction faible avec la matière, par ex. 10^{-19} barns pour les antineutrinos électroniques via le processus de décroissance bêta inverse sur les protons. La distribution des fragments de fission dépend des propriétés des isotopes fissibles (^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu) et de l'énergie des neutrons provoquant les fissions dans le cœur. L'énergie libérée par fission, le nombre moyen d'antineutrinos émis et leur énergie moyenne dépendent

aussi directement de l'isotope fissible qui engendre une fission, cf. Tableau 1.2.1. Par conséquent, ces différences dans les caractéristiques des fissions entraînent des différences importantes dans les spectres en énergie des antineutrinos associés. Ainsi si l'on mesure les caractéristiques (spectre en énergie, flux) des antineutrinos émis par un réacteur nucléaire, on doit pouvoir remonter à la composition du combustible (avec une certaine précision) ainsi qu'à la puissance thermique du réacteur, selon les informations dont on dispose sur l'opération du réacteur. On peut écrire la relation suivante, établie expérimentalement lors de l'expérience de Rovno par les auteurs de la référence [31] qui lie le flux des antineutrinos mesurés à la puissance thermique et à la composition du combustible :

$$N(E_{\bar{\nu}}) = \gamma_{(E_{\bar{\nu}})} \left(1 + k_{(E_{\bar{\nu}})} \right) W_{th} \quad 1.18$$

Le terme gamma, quasi-constant en fonction du temps, caractérise le détecteur et le réacteur (géométries, matériaux, angle solide, taille, efficacité de détection...). Il inclut également la section efficace d'interaction normalisée à une production d'énergie par l' ^{235}U seulement. W_{th} est la puissance thermique du cœur du réacteur et k est un terme correctif prenant en compte la composition du combustible. Cette équation signifie qu'à composition du combustible fixée, le flux des antineutrinos reflète la puissance thermique du cœur, tandis qu'à puissance constante, le flux des antineutrinos reflète l'évolution de la composition du combustible dans le cœur (avec le taux de combustion, appelé « burnup »).

Isotope	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu
Energie libérée par fission (MeV)	201.7	205.0	210.0	212.4
Energie moyenne de l'antineutrino (MeV)	1.46	1.56	1.32	1.44
Nombre des antineutrinos par fission ($E > 1.8$ MeV)	5.58 (1.92)	6.69 (2.38)	5.09 (1.45)	5.89 (1.83)

Tableau 1.2.2 : Caractéristiques principales des antineutrinos provenant des fissions de l' ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu et du ^{241}Pu , dans un réacteur de type REP 900 standard [30], [32].

Aujourd'hui, un effort mondial concentré sur la physique appliquée des antineutrinos a commencé depuis la demande de l'AIEA il y a quelques années, à ses états membres, de mener une étude de sensibilité sur la sonde antineutrinos. Les détecteurs de l'expérience Double Chooz fournissent l'état de l'art concernant la technologie de détection des antineutrinos. Double Chooz est le cadre du début des études du groupe ERDRE dans cette thématique de non-prolifération avec les antineutrinos, et l'étude du spectre observé par le détecteur proche rapproche de l'historique des réacteurs de Chooz permettra de mettre une limite stricte de précision de la mesure des antineutrinos sur la mesure de puissance thermique et sur la sensibilité au contenu fissile dans le cœur d'un réacteur. Le détecteur proche commencera à prendre des données en 2013.

Le principe de détection des antineutrinos est effectué très souvent via le processus de décroissance bêta inverse :

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n \quad 1.19$$

où la cible de proton est le noyau d'un atome d'hydrogène d'un liquide scintillateur. Le positron produit un signal de lumière rapide capturé par les photomultiplicateurs (PMT) couplés optiquement avec la cible liquide.

Les positons vont créer un signal dit « prompt » en perdant leur énergie dans la matière puis en s'annihilant avec un électron pour créer deux rayonnements gamma :

$$E_{prompt} = E_{\bar{\nu}_e} - (m_n - m_p) + m_e \quad 1.20$$

Cette énergie est proportionnelle à l'énergie cinétique de l'antineutrino incident plus sa masse au repos.

Le neutron est détecté via sa capture par un noyau de Gd dopant du liquide scintillant. Cette capture se produit en moyenne 30μs après le signal prompt. C'est le temps nécessaire pour que les neutrons soient thermalisés à l'énergie de la résonance de capture. La capture d'un neutron par le noyau de Gd produit une cascade de rayons γ avec une quantité d'énergie totale d'environ 8 MeV et une multiplicité moyenne de 4 photons. L'excès de masse dans le processus de décroissance bêta inverse implique un seuil de $M_n - M_p + M_e = 1,8$ MeV sur l'énergie de l'antineutrino incident.

Les produits de fission nous donnent non seulement la composition du combustible et la puissance thermique du réacteur en temps réel via les antineutrinos, mais aussi l'indice de sûreté du fonctionnement du réacteur à l'arrêt via la puissance résiduelle.

Aujourd'hui, avec le développement de technologie, l'AIEA demande encore plus pour les détecteurs d'antineutrinos [33] :

- surs (adaptés à être installés près d'un réacteur nucléaire) et robustes
- Compacts
- Faciles à utiliser par les inspecteurs
- Contrôlables à distance

Malgré les évolutions dans la recherche scientifique des antineutrinos, il existe toujours des difficultés à surmonter pour obtenir de meilleures performances : l'intégration du détecteur dans le système des garanties, l'effort pour réduire la taille ou simplifier le design actuel tout en gardant les mêmes performances, la difficulté liée au compromis entre taille du détecteur, distance du réacteur et puissance du réacteur (pour conserver une statistique suffisante).

Après cette introduction, nous sommes prêts à expliciter un peu plus les mesures de physique nucléaire que nous pouvons faire pour améliorer nos connaissances des caractéristiques de décroissance des produits de fission, et ainsi mieux déterminer la puissance résiduelle des réacteurs et leur émission en antineutrinos.

1.2.5. La méthode TAGS pour les mesures de désintégration bêta des produits de fission à vie courte

Une façon d'éviter l'effet Pandémonium est l'application de la technique d'absorption totale à des études de la désintégration bêta [34].

1.2.5.1. Technique d'absorption totale de spectroscopie des rayons gamma

La technique d'absorption totale de spectroscopie des rayons gamma est basée sur la détection de la somme de toute l'énergie des rayons gamma produits à partir de la désexcitation d'un niveau peuplé dans la chaîne de désintégration bêta au lieu de détecter

chaque rayon gamma individuel comme dans la spectroscopie à haute résolution (détecteur de type Germanium). Idéalement, le spectre d'énergie fourni par un Total Absorption Gamma-ray Spectrometer, appelé TAGS, a des pics somme correspondant à l'énergie totale déposée dans le spectromètre par les cascades de rayons gamma. Une image schématique est donnée dans la fig 1.2.7.

Si nous supposons un schéma simple de décroissance comme montré dans la figure 1.2.5, la décroissance au niveau 2 (E_2) va produire une cascade de deux rayons gamma, E_{γ_a} et E_{γ_b} . Dans ce cas, un détecteur TAGS idéal mesurera un spectre avec un pic à l'énergie E_2 .

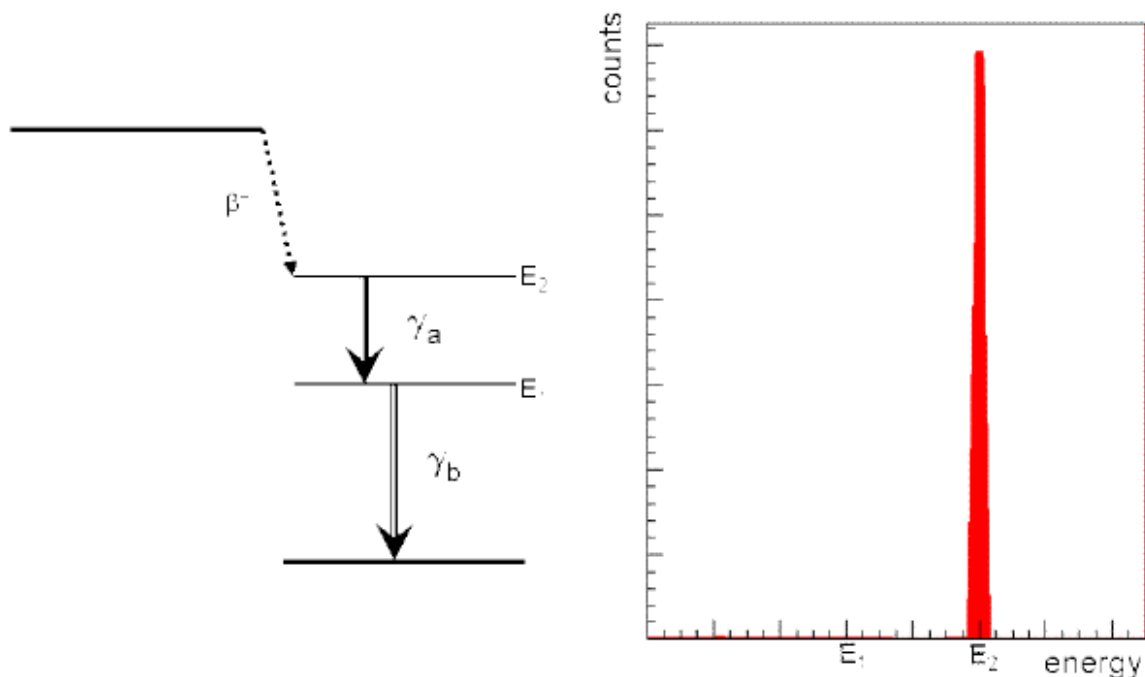


Fig. 1.2.7 : Illustration de principe de TAGS : La figure à gauche décrit un tel schéma de décroissance bêta d'une source et la figure à droite décrit la réponse avec le détecteur TAGS. Dans cette source, seul le niveau plus haut à la réponse dans TAGS qui donne le pic somme correspondant à cette énergie.

Les détecteurs TAGS sont construits avec de grands cristaux de scintillateurs, par exemple de NaI ou BaF_2 , qui couvrent un angle solide d'environ 4π autour de la source radioactive, fournissant une efficacité très élevée au spectromètre pour la détection des rayons gamma. Une réponse idéale de TAGS serait indépendante de la cascade de rayons gamma et, par conséquent, l'information sur l'alimentation bêta pourrait être extraite directement à partir du spectre mesuré. Cela implique qu'il ait 100% d'efficacité totale à l'énergie du pic pour les rayons gamma de toutes énergies.

Cependant, une efficacité réaliste est toujours inférieure à 100% pour des raisons pratiques notamment ; il ne couvre pas complètement un angle 4π solide, il y a des zones inertes en raison des matériaux entourant les cristaux. L'efficacité un peu inférieure à 100% rend l'analyse des spectres d'absorption totale complexe car l'intensité de bêta doit être extraite à partir du spectre mesuré qui dépend de la réponse du spectromètre des rayons gamma.

Le spectre des données mesurées d est lié à la distribution de réponse d'un niveau f par l'équation :

$$d_i = \sum_{j=1}^{j_{\max}} R_{ij} f_j, \quad i = 1, i_{\max} \quad \text{ou} \quad d = R.f \quad 1.21$$

où d_i représente le contenu du spectre de canal i , f_j représente le nombre de désintégrations peuplé au niveau étiqueté j et chaque colonne j de la matrice R représente la réponse moyenne (ou spectre normalisé) du spectromètre de décroissance dans les niveaux ou l'intervalle d'énergie représenté par le canal j . La réponse de la matrice R dépend du rayonnement émis, ainsi que du détecteur. La connaissance de la matrice R est une condition préalable pour l'analyse des spectres TAGS. Ce problème inverse peut être résolu en utilisant des techniques de dé-convolution appropriées telles que celles développées dans la référence [35].

La réponse électromagnétique de désexcitation d'un niveau, c'est à dire la réponse à toutes les cascades possibles de rayons gamma peuvent être construites par convolution récursive.

$$R_j = \sum_{k=0}^{j-1} b_{jk} g_{jk} \otimes R_k \quad 1.22$$

où b_{jk} représente le rapport de branchement pour la transition du niveau j au niveau k et g_{jk} est la réponse au rayon gamma émis du niveau j au niveau k . Il a été démontré dans la réf. [36] qu'un excellent accord avec les réponses mesurées pour plusieurs isotopes radioactifs peut être obtenu lorsque les réponses individuelles des rayons gamma sont produites par simulation Monte Carlo (code Geant IV).

Une autre difficulté est liée aux transitions entre les états fondamentaux du noyau père et du noyau fils. En raison du principe de la technique, la réponse de $gs \rightarrow gs$ (où gs signifie l'état fondamental), si elle existe, est plus difficile à détecter, car seule la pénétration de l'électron bêta pourrait produire un signal dans les détecteurs TAGS. Cet effet réduit la sensibilité de l'installation pour les transitions de $gs \rightarrow gs$.

1.2.5.2. Détermination des énergies moyennes avec un détecteur TAGS

L'énergie moyenne du rayon bêta et gamma peut être calculée en utilisant l'intensité de la réponse bêta. Les équations sont les suivantes :

$$\overline{E}_\beta = \sum_i I_\beta(E_i) \frac{f_\beta(Q_\beta - E_i)}{f(Q_\beta - E_i)} \quad 1.23$$

$$\overline{E}_\gamma = \sum_i I_\beta(E_i) E_i \quad 1.24$$

où $f_\beta(Q_\beta - E_i)$ est l'énergie moyenne du spectre beta continu correspondant au niveau excité E_i et $f(Q_\beta - E_i)$ est la normalisation qui coïncide avec la fonction intégrée de Fermi :

$$f_\beta(Q_\beta - E_i) = \int_1^{\frac{(Q_\beta - E_i)}{mc^2} + 1} mc^2 (\varepsilon - 1) \varepsilon \sqrt{\varepsilon^2 - 1} \left(\frac{(Q_\beta - E_i)}{mc^2} + 1 \right)^2 F(Z, \varepsilon) d\varepsilon \quad 1.25$$

$$f(Q_\beta - E_i) = \int_1^{\frac{(Q_\beta - E_i)}{mc^2} + 1} \varepsilon \sqrt{\varepsilon^2 - 1} \left(\frac{(Q_\beta - E_i)}{mc^2} + 1 \right)^2 F(Z, \varepsilon) d\varepsilon \quad 1.26$$

$$\varepsilon = \frac{E_\beta}{mc^2} + 1 \quad 1.27$$

où E_β est l'énergie cinétique de la particule bêta, E_i est l'énergie du i-ème niveau dans le noyau fils, m est la masse au repos d'électron, Z est le nombre de protons du noyau fils et F est la fonction de Fermi. Pour plus de simplicité, nous supposons que toutes les transitions sont de type permises.

1.2.5.3. Application de la technique TAGS à ce problème de puissance résiduelle

La technique TAGS a été appliquée avec succès par Greenwood et al. [37] avec le séparateur de masse en ligne à l'INEL (Idaho National Engineering Laboratory) à Idaho Falls. Greenwood a mesuré la réponse des bêtas en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fils de 45 isotopes de 12 produits de fission : Rb, Sr, Y, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm et Eu. Ces données ont été incluses dans JEFF-3.1, la dernière version de la bibliothèque de données européenne, et JENDL, le nom actuel du fichier de données japonaises et leur effet a été étudié par Yoshida et ses collègues [38]. L'effet de l'inclusion de ces données dans la base de données peut être vu ci-dessous.

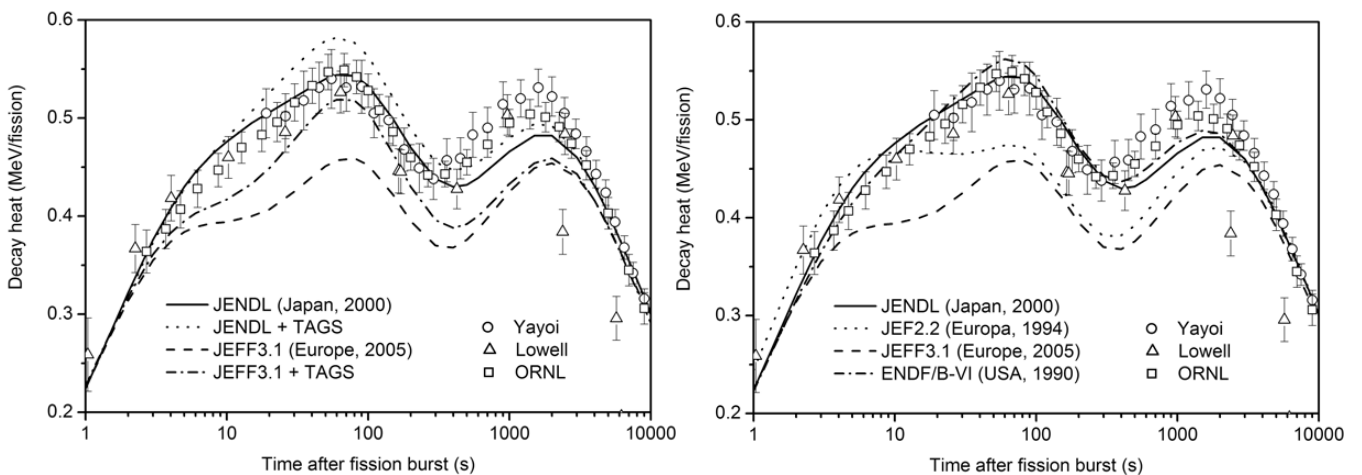


Fig. 1.2.8 : La courbe à gauche illustre la puissance résiduelle du component de gamma après la fission du ^{239}Pu sans correction de TAGS (10% à 70s). La courbe à droite décrit la même chose mais avec la correction de TAGS.

Après l'inclusion de données TAGS de Greenwood et al, la courbe de JEFF-3.1 a été tirée vers le haut, en améliorant l'accord obtenu pour cette base de données, mais les résultats en utilisant JENDL, qui sont aussi tirés vers le haut, s'écartent de la mesure intégrale à temps de refroidissement de début. Les différences entre les résultats des deux bases de données proviennent du fait que JENDL comprend des données expérimentales complétées par des calculs théoriques (Gross Theory) dans les cas où l'information expérimentale est considérée comme incomplète et JEFF-3.1 utilise uniquement des données expérimentales.

Afin d'avoir une meilleure compréhension de l'origine de la différence, Yoshida et collaborateurs ont identifié les nucléides qui contribuent le plus aux différences entre les deux bases de données après l'introduction des données de TAGS et qui sont des candidats possibles à être mesurées en utilisant la technique TAGS. Par exemple, ils ont trouvé que les noyaux ^{102}Tc , ^{103}Mo , ^{105}Mo et ^{139}Xe sont les principaux contributeurs importants à la différence.

1.2.5.4. Proposition de mesures TAGS pour la puissance résiduelle des réacteurs à l'arrêt

Yoshida et ses collègues ont établi une liste prioritaire de nucléides qui sont responsables de la différence, qui sont susceptibles de souffrir de l'effet Pandémonium et qui devraient être mesurés en utilisant la technique TAGS. Ils ont sélectionné des produits de fission des noyaux en utilisant les critères suivants :

- leur contribution à la différence entre JENDL et JEFF-3.1 est supérieure à 1% de la différence totale fractionnaire dans la composante des rayons bêta et gamma qui contribuent à la puissance résiduelle après une fission de l' ^{235}U et du ^{239}Pu .
- Ils sont les contributeurs importants à la puissance résiduelle.
- Le plus haut niveau connu est inférieur à 70% de la valeur Q_β , qui est une indication claire que les données disponibles de décroissance peuvent souffrir de l'effet Pandémonium.

Le tableau ci-dessous correspond à la dernière version de cette liste de demande de haute priorité. Les noyaux sont classés en fonction de leur priorité (1 signifie une haute priorité et 3 signifie moins de priorité). Quelques données supplémentaires sont fournies dans la dernière colonne de ce tableau pour plusieurs noyaux. Ce tableau contient également quelques radionucléides, mesurés à INEL par le séparateur de masse en ligne par Greenwood et al. dont les méthodes d'analyse des données nécessitent la comparaison avec les nouveaux.

Radionucléide	Priorité	Q_β (keV)	Demi-vie	Commentaires
$^{86}_{35}\text{Br}$	1	7626 (11)	55,1 s	
$^{87}_{35}\text{Br}$	1	6852 (18)	55,65 s	Schéma de décroissance compliqué avec un nombre considérable de gammas ; grande incertitude dans l'énergie moyenne de gamma en provenance d'un désaccord significatif parmi plusieurs des

				mesures de gammas. (β^- , n)
$^{88}_{35}\text{Br}$	1	8960 (40)	16,36 s	(β^- , n)
$^{89}_{36}\text{Kr}$	1	4990 (50)	3,15 min	Schéma de décroissance incomplet
$^{90}_{36}\text{Kr}$	1	4392 (17)	32,32 s	Schéma de décroissance incomplet
$^{90m}_{37}\text{Rb}$	2	6690 (15)	258 s	Répétition de mesure TAGS de INEL, cross-check de données
$^{92}_{37}\text{Rb}$	2	8096 (15)	4,49 s	(β^- , n)
$^{89}_{38}\text{Sr}$	2	1493 (3)	50,53 j	Demi-vie très courte et possible (β^- , n)
$^{97}_{38}\text{Sr}$	2	7470 (16)	0,429 s	
$^{96}_{39}\text{Y}$	2	7096 (23)	5,34 s	
$^{99}_{40}\text{Zr}$	3	4558 (15)	2,1 s	
$^{100}_{40}\text{Zr}$	4	3335 (25)	7,1 s	
$^{98}_{41}\text{Nb}$	1	4583 (5)	2,86 s	
$^{99}_{41}\text{Nb}$	1	3639 (13)	15,0 s	
$^{100}_{41}\text{Nb}$	1	6245 (25)	1,5 s	
$^{101}_{41}\text{Nb}$	1	4569 (18)	7,1 s	
$^{102}_{41}\text{Nb}$	2	7210 (40)	1,3 s	
$^{103}_{42}\text{Mo}$	1	3750 (60)	67,5 s	
$^{105}_{42}\text{Mo}$	1	4950 (50)	35,6 s	
$^{102}_{43}\text{Tc}$	1	4532 (9)	5,28 s	
$^{103}_{43}\text{Tc}$	1	2662 (10)	54,2 s	
$^{104}_{43}\text{Tc}$	1	5600 (50)	18,3 min	
$^{105}_{43}\text{Tc}$	1	3640 (60)	7,6 min	
$^{106}_{43}\text{Tc}$	1	6547 (11)	35,6 s	
$^{107}_{43}\text{Tc}$	2	4820 (90)	21,2 s	
$^{132}_{51}\text{Sb}$	1	5509 (14)	2,79 min	
$^{135}_{52}\text{Te}$	2	5960 (90)	19,0 s	
$^{136}_{53}\text{I}$	1	6930 (50)	83,4 s	Schéma de décroissance incomplet
$^{136m}_{53}\text{I}$	1	7580 (120)	46,9 s	
$^{137}_{53}\text{I}$	1	5877 (27)	24,13 s	(β^- , n)
$^{137}_{54}\text{Xe}$	1	4166 (7)	3,82 min	Schéma de décroissance incomplet
$^{139}_{54}\text{Xe}$	1	5057 (21)	39,68 s	
$^{140}_{54}\text{Xe}$	1	4060 (60)	13,6 s	
$^{142}_{55}\text{Cs}$	3	7308 (11)	1,69 s	(β^- , n)

$^{145}_{56}\text{Ba}$	2	5570 (110)	4,31 s	Répétition de mesure TAGS de INEL, cross-check de données
$^{143}_{57}\text{La}$	2	3425 (15)	14,2 min	Répétition de mesure TAGS de INEL, cross-check de données
$^{145}_{57}\text{La}$	2	4110 (80)	24,8 s	Répétition de mesure TAGS de INEL, cross-check de données

Tableau 1.2.3 : Liste de demande en haute priorité pour la mesure TAGS. [39], [14]

1.2.5.5. Mesures récentes par la technique TAGS réalisées par l'équipe de Valence

L'équipe de l'IFIC de Valencia, Espagne, a publié récemment les résultats d'une expérience utilisant la technique TAGS lors de laquelle ont été mesurées les probabilités d'alimentation bêta des $^{102;104;105;106;107}\text{Tc}$, ^{105}Mo , et ^{101}Nb , contributeurs importants à la puissance résiduelle des réacteurs [40]. Cette expérience a couplé pour la première fois un spectromètre TAGS à un piège de Penning, le piège JYFLTRAP, permettant une très bonne purification du faisceau incident, à l'Université de Jyväskylä. Les résultats obtenus résolvent une partie significative de la différence entre les données de référence de Tobias [41] et les calculs réalisés en sommant les contributions des produits de fission à partir des bases de données évaluées pour la composante gamma de la puissance résiduelle dégagée dans les 4 à 3000 premières secondes après un burst de fission du ^{239}Pu .

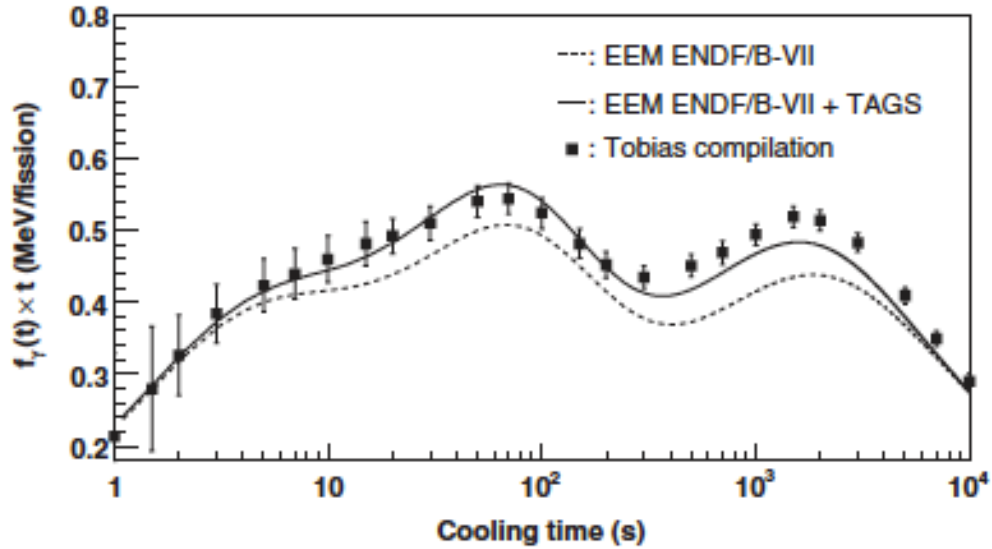


Fig. 1.2.9 : Comparaison de la composante électromagnétique de la puissance résiduelle du ^{239}Pu avant et après l'inclusion des dernières mesures réalisées par la technique TAGS par l'équipe de l'IFIC [40], avec les données de Tobias et al. [41] considérées comme la référence dans le domaine.

Ces résultats sont très encourageants et montrent qu'en ayant identifié les contributions principales et en mesurant les caractéristiques des décroissances associées avec une technique adaptée, on peut améliorer significativement les prédictions de la puissance résiduelle.

C'est avec une motivation et une méthodologie similaire que nous avons proposé de telles mesures avec l'objectif d'améliorer nos connaissances sur les spectres d'antineutrinos émis par les réacteurs nucléaires.

1.2.5.6. Proposition de mesures TAGS pour le spectre en énergie des antineutrinos des réacteurs

Dès les débuts de l'expérience Double Chooz et bien avant les mesures récentes de l'angle de mélange θ_{13} par les expériences Double Chooz [29], Daya Bay [27] et Reno [28], des recherches pour une nouvelle évaluation des spectres en énergie des antineutrinos des réacteurs ont débuté.

Ces recherches ont conduit à deux méthodes de calcul des spectres en énergie issus des principaux noyaux 'fissiles' ^{235}U , ^{239}Pu , ^{238}U et ^{241}Pu . L'une s'appuie sur les mesures de spectres bêta intégraux mesurés à l'ILL dans les années 80 par l'équipe de K. Schreckenbach, servant de référence actuellement pour les expériences de physique des neutrinos [42], [43], [44], [45]. L'autre repose sur la sommation des contributions des décroissances bêta individuelles des produits de fission, calculées avec les informations contenues dans les bases de données nucléaires qui ont beaucoup augmenté depuis les années 80. Finalement une nouvelle méthode de conversion des spectres bêta de référence a été mise au point en s'appuyant sur les données nucléaires contenues dans les bases, conduisant à une réévaluation des spectres des antineutrinos pour ces 4 noyaux [46]. La normalisation de ces spectres a alors changé suffisamment pour aboutir à une réévaluation des conclusions des expériences des

neutrinos des réacteurs des années 80 et 90. En effet, la nouvelle normalisation des spectres convertis en antineutrinos est plus élevée, conduisant à un déficit d'antineutrinos mesuré par les différentes expériences des neutrinos des réacteurs, ce que l'on appelle « l'anomalie réacteur » [47]. Cette anomalie pourrait être expliquée de plusieurs façons, l'une proviendrait d'une mauvaise évaluation de l'une des corrections au spectre en énergie ; la contribution de magnétisme faible, pointée par P. Huber [48] comme étant potentiellement sujette à une barre d'erreur conséquente et dont l'effet, si vraiment l'erreur sur ce terme était avérée importante, pourrait absorber l'anomalie réacteur. L'autre explication potentielle serait l'existence de neutrinos stériles, sensibles uniquement à la gravitation, dans lesquels les neutrinos de saveurs leptoniques habituelles pourraient osciller.

Pour l'instant il n'existe pas d'autres mesures de spectres bêta intégraux que celles réalisées par K. Schreckenbach et al. dans les années 80. L'alternative consiste à calculer les spectres par la méthode de sommation des contributions des produits de fission, méthode que nous appellerons la méthode *ab initio*. Malgré de nombreuses nouvelles données de décroissance présentes dans les bases, les études réalisées dans le groupe de SUBATECH en collaboration avec une équipe de l'IRFU/SPhN ont montré que l'accord avec les spectres convertis à partir des données de Schreckenbach était de l'ordre de 10%, ce qui ne permet pas l'utilisation de ces spectres pour les expériences de physique du neutrino, à moins d'en évaluer précisément et indépendamment les erreurs associées.

Cependant, la méthode '*ab initio*' est la seule qui permette d'évaluer les effets hors équilibre à appliquer sur les spectres des antineutrinos. En effet, les mesures réalisées à l'ILL correspondent à 12h ou 36h d'irradiation, et ils n'incluent pas la capture neutronique sur les produits de fission qui déforment éventuellement les spectres. Les temps associés aux mesures près d'un réacteur nucléaire sont beaucoup plus longs, ajoutant les contributions de produits de fission à vie longue, et la capture neutronique peut avoir un impact non négligeable qu'il est nécessaire d'évaluer [46]. L'autre apport unique de la méthode *ab initio* est de permettre d'étudier des scénarios proliférant avec les antineutrinos pour des réacteurs autres que les réacteurs thermiques habituels, employant d'autres types de combustibles dans d'autres gammes d'énergie que la gamme des neutrons thermiques [49]. Enfin c'est actuellement la seule méthode alternative aux mesures de l'ILL pour déterminer les spectres d'antineutrinos. Nous avons donc très récemment inclus les dernières mesures TAGS publiées par A. Algora et al. dans notre calcul de spectres d'antineutrinos par la méthode *ab initio*, montrant que les 7 noyaux mesurés à eux seuls ont un impact important sur les spectres, en particulier des isotopes de Pu et de ^{238}U [50].

L'équipe de SUBATECH a donc débuté une étude [51] visant à établir une liste de produits de fission qui contribuent de façon importante aux spectres en énergie principaux (d'abord ^{235}U et ^{239}Pu) à partir des simulations de spectres réalisés avec le code MURE couplé aux bases de données nucléaires telles que ENDF, JENDL, JEFF3.1. Les simulations de spectres en énergie ont clairement montré que, comme dans le cas de la puissance résiduelle des réacteurs, des noyaux impliqués dans l'émission des antineutrinos souffrent de l'effet Pandémonium. Cet effet se manifeste par une surestimation de l'énergie des spectres bêta, visible en comparant les simulations avec les spectres de références mesurés par K. Schreckenbach et al.. Nous avons identifié dans cette liste de noyaux les noyaux qui souffrent potentiellement de l'effet Pandémonium. Les critères utilisés sont l'adéquation entre le bilan en énergie de la décroissance (le « QBeta ») et l'énergie du dernier niveau excité dans le noyau fils, la cohérence entre les spins et parités des niveaux et les rapports de branchement, la compatibilité des différentes bases de données entre elles pour un même noyau. Nous avons trouvé des noyaux d'intérêt commun avec les listes de noyaux à mesurer établies pour la

puissance résiduelle des réacteurs, et décidé de débiter une collaboration expérimentale avec l'équipe de l'IFIC de Valencia, Espagne. La technique de Spectroscopie par Absorption Totale semble particulièrement bien adaptée à la problématique des antineutrinos des réacteurs. L'équipe de SUBATECH a donc soumis une proposition d'expérience en collaboration avec l'IFIC au Proposal Advisory Committee de l'Université de Jyväskylä en septembre 2009, expérience acceptée. En novembre 2009, une autre expérience portant sur des noyaux d'intérêt pour la puissance résiduelle des réacteurs à l'arrêt a été réalisée. Nous avons participé à la prise de données, et j'ai pris en charge le début de l'analyse de cette expérience. En particulier, deux noyaux d'intérêt pour les antineutrinos des réacteurs issus de la proposition d'expérience de SUBATECH, les ^{92}Rb et ^{93}Rb , ont pu d'ores et déjà être mesurés. J'ai donc porté mon attention particulièrement sur ces noyaux. Le ^{92}Rb est en outre d'intérêt pour la puissance résiduelle également.

Nuclei d'intérêt (transition GS à GS)	Demi-vie (s)	Q_β (keV)	Réponse du GS (%)	S_n dans noyau fils (keV)	Pn (%)	Contribution dans le spectre de ^{235}U	Contribution dans le spectre du ^{239}Pu	Noyau fils	Demi-vie
^{92}Rb (0- -> 0+)	4.49	8106	51	7342	0.01 1	3-4MeV : 3.7% 4-5MeV : 9% 5-6MeV : 19% 6-7MeV : 32% 7-8MeV : 34%	3-4MeV : 2% 4-5MeV : 5.6% 5-6MeV : 13.5% 6-7MeV : 25.7% 7-8MeV : 33%	^{92}Sr	2.66 h
^{93}Rb (5/2- -> 5/2+)	5.84	7460	34	5314	1.35	4-5MeV : 3.5%, 5-6MeV : 5.6%, 6-7MeV : 6.3%	4-5MeV : 2.1% 5-6MeV : 3.9% 6-7MeV : 5%	^{93}Sr	7.42 3m

Tableau 1.2.4 : Caractéristiques des noyaux $^{92,93}\text{Rb}$ mesurés en novembre 2009 [51].

Les caractéristiques de ces deux noyaux ainsi que leur contribution au spectre bêta de ^{235}U et du ^{239}Pu sont présentées dans le tableau 1.2.4.

Chapitre 2 :

Outils de simulation MCNPX/ MURE

2.1. Code de simulation stochastique MCNP

Le code MCNP (Monte Carlo N Particules) [52], développé par le Los Alamos National Laboratory (LANL), est un code de transport probabiliste des particules (neutrons et gammas). Les codes de Monte Carlo deviennent un outil essentiel en physique de l'interaction rayonnement - matière, tant dans le domaine de la radioprotection que dans celui de la physique médicale, en particulier la radiothérapie. La possibilité d'y inclure une très grande partie de la physique de l'interaction élémentaire sous la forme de modèles numériques de plus en plus élaborés les rend à la fois plus prédictifs, précis et fiables. Ils permettent en outre la détermination de grandeurs inaccessibles par l'expérience. L'utilisation de la méthode Monte-carlo pour la simulation va demander au système un temps de calcul très grand mais le fait est que l'on peut éviter l'approximation dans le calcul, telles les méthodes traditionnelles, de certains systèmes complexes grâce aux tirages aléatoires qui sont appelés le statistique, donc la proportion du temps de calcul. L'utilisation des codes de Monte Carlo permet donc d'obtenir des valeurs correctives plus exactes ou inaccessibles par les méthodes traditionnelles. Le transport des particules est réalisé en énergie continue et peut être en dimension 3D mais le code MCNP n'effectue que les calculs statiques, c'est-à-dire que le combustible n'évolue pas pendant le transport. C'est la raison de création du code MURE [53], [54], [55].

Le code MCNP donne le calcul du flux grâce au fichier d'entrée donné par l'utilisateur, lu par MCNP, qui comprend trois parties principales concernant la configuration à étudier, telles que la définition de la géométrie, de la description des matériaux et des descriptions physiques de géométrie : la source de neutrons, les tallies...

Le fichier d'entrée MCNP est facilement créé à l'aide du code MURE via l'interface C++ qui contient des scripts pour définir le système.

2.1.1. Principe de Monte-Carlo

Les calculs de Monte Carlo suivent l'histoire des neutrons différents sur une longueur tirée au hasard. Un exemple de code utilisant cette méthode est MCNP. Dans le schéma de Monte-Carlo, il n'y a pas de discrétisation en espace ou temps. On ne résout aucun des équations différentielles et il n'est pas nécessaire d'écrire une telle équation. Dans ce sens, des codes Monte Carlo résolvent les équations de transport intégrales. Le principe est de suivre l'histoire des particules individuelles. Ensuite, le comportement moyen des particules est déduit, en utilisant le théorème de la limite centrale du comportement moyen des particules simulées. L'histoire d'une particule comprend sa vie de sa naissance jusqu'à sa mort et chaque événement sur son parcours, c'est-à-dire l'interaction avec la matière, est calculé [56]. Pour ce faire, il faut savoir :

- si le neutron interagit ou non avec le milieu ;
- si oui, avec quel noyau du milieu il interagit ;
- quel type de réaction a lieu ;
- quelles sont les particules secondaires éventuellement émises.

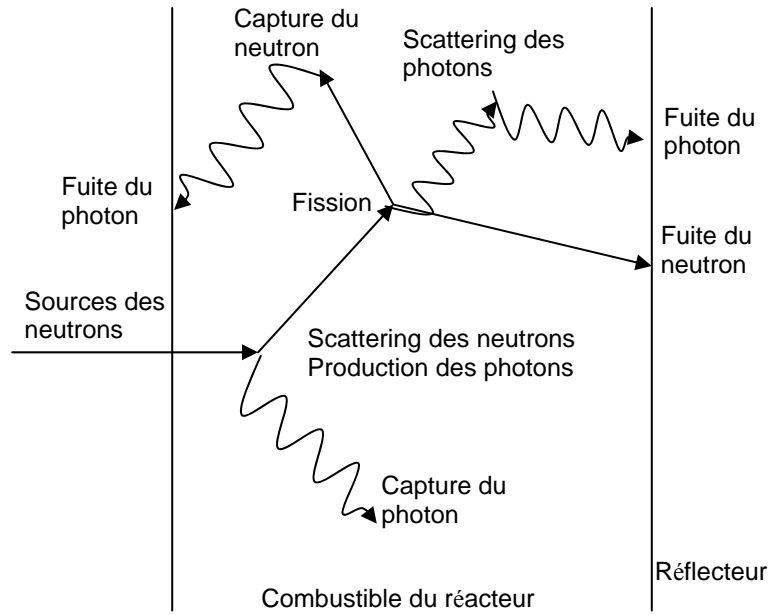


Fig. 2.1.1 : Pas aléatoire des neutrons dans la matière [56].

2.1.2. MCNP

Tout au long de cette thèse nous avons utilisé plusieurs versions du code MCNP. Nous appellerons du nom générique MCNP les versions suivantes : MCNPX 2.5.e, MCNPX 2.7.d et MCNP5. Les codes MCNPX diffèrent de MCNP est ajouté par le transport des particules chargées.

2.1.2.1. Principe de calcul MCNP

Pour la physique des réacteurs, nous nous intéressons essentiellement aux neutrons. Pour chaque neutron suivi, le code MCNP réalise en plusieurs étapes :

- calcul du libre parcours moyen $\lambda(E)$ de la particule à une énergie donnée, défini par :

$$\lambda(E) = \frac{1}{\Sigma_{tot}(E)} \quad 2.1$$

où $\Sigma_{tot}(E)$ est la section efficace macroscopique du milieu qui se décompose comme :

$$\Sigma_{tot}(E) = \sum_{\text{noyaux } i} N_i \sigma_i^{tot}(E) \quad 2.2$$

avec N_i le nombre de noyaux i par cm^3 et $\sigma_i^{tot}(E)$ la section efficace microscopique totale du noyau i en cm^2

- tirage aléatoire de la longueur parcourue $l(E)$ avant l'interaction suivante grâce à $\lambda(E)$

$$l(E) = -\lambda(E) \ln(1 - p) \quad 2.3$$

où p est un nombre aléatoire tiré uniformément dans $[0, 1[$.

- si cette longueur permet au neutron de rester dans le milieu, c'est-à-dire $l(E)$ est plus petite que la distance entre le point d'émission de neutrons et le bord du milieu, le

noyau k sur lequel la réaction a lieu est déterminé en tirant aléatoirement un nombre p uniformément dans $[0, 1[$. Le noyau k est sélectionné par le test :

$$\sum_{i=1}^{k-1} \Sigma_{tot,i}(E) < p \sum_{i=1}^N \Sigma_{tot,i}(E) < \sum_{i=1}^k \Sigma_{tot,i}(E) \quad 2.4$$

où N est le nombre total de noyaux présents, $\Sigma_{tot,i}(E)$ la section efficace macroscopique totale du noyau i . Plus la section efficace du noyau est grande, plus le neutron a de chances d'interagir avec ce noyau. Une fois le noyau k est défini, le type de réaction r qu'il subit est déterminé de la même manière :

$$\sum_{i=1}^{r-1} \sigma_i(E) < p \sum_{i=1}^R \sigma_i(E) < \sum_{i=1}^r \sigma_i(E) \quad 2.5$$

où $\sigma_i(E)$ est la section efficace microscopique de réaction i pour le noyau k précédent, R le nombre de réactions possibles pour le noyau k et p est un nouveau nombre aléatoire tiré uniformément dans $[0, 1[$.

- l'histoire du neutron peut être déterminée par différentes voies : lors d'une capture radiative, le neutron est définitivement absorbé et considéré pour mort ; d'autre part, en cas de réactions (diffusion, fission...), le neutron survit ; ou, un ou plusieurs neutrons sont réémis. On ne considère pas la 'mort naturelle' du neutron par décroissance radioactive car son temps de décroissance est beaucoup plus grand que son temps de vie moyen dans le réacteur. Leur énergie et leur direction sont tirées au hasard selon des lois dépendant du type de réaction qui les a créés.

Comme décrit ci-dessus, un fichier d'entrée de MCNP est constitué de trois parties : la première décrit la géométrie du système, ensuite la deuxième est la description de composition précise de chaque matériau présent dans la géométrie, et la dernière est d'établir le contexte physique associé à cette géométrie dont la source de neutrons est un facteur important.

2.1.2.2. Calcul de criticité

Dans les calculs de criticité c'est le coefficient de multiplication effectif du système simulé qu'il faut évaluer. MCNP permet d'effectuer le calcul du coefficient de multiplication effectif d'un système. On appelle alors un ensemble d'histoires de neutrons un cycle de k_{eff} , ce qui correspond à une génération de neutrons comme on la définit en théorie des réacteurs. Le coefficient de multiplication est alors donné par le rapport entre le nombre de neutrons générés à la fin d'un cycle de k_{eff} (les neutrons créés lors des fissions dans ce cycle) et le nombre de neutrons dont les histoires sont évaluées dans ce cycle (nombre de neutron au début de la cette génération). La valeur attendue du facteur de multiplication est alors estimée en moyennant sur les événements du cycle. On peut obtenir de la même façon les valeurs de la probabilité de fuite ou la fraction des événements conduisant à la capture.

L'erreur relative dans l'estimation du coefficient de multiplication va généralement diminuer quand le nombre de cycles sera augmenté. Ainsi de nombreux cycles sont nécessaires pour fournir une bonne estimation du k_{eff} .

Les premiers cycles ne sont pas utilisés pour l'estimation du k_{eff} , il ne serait pas approprié de les utiliser car la source de neutrons n'a pas encore convergé.

La distribution des neutrons sources (de fission) dans un système dépend de la valeur propre du système et de sa géométrie, le temps nécessaire aux codes Monte Carlo pour approcher la distribution de neutrons convergée est conséquent. C'est pour cette raison que les premiers cycles (3e chiffre dans la carte KCODE) sont ignorés dans l'estimation finale du k_{eff} . Les estimations de k_{eff} des cycles restants sont moyennées pour obtenir la valeur moyenne du coefficient de multiplication effectif.

Si on évalue G générations et qu'on considère les D premières comme cycles inactifs, alors l'estimation du coefficient de multiplication effectif du système est :

$$\bar{k} = \frac{1}{(G - D)} \sum_{i=D+1}^G k_i \quad 2.6$$

où k_i est le coefficient de multiplication estimé par le $i^{\text{ème}}$ cycle.

La répétabilité de l'estimation est déterminée par la question suivante : si on lance le même calcul avec différents nombres aléatoires, quelle différence y aura-t-il sur le résultat ? Cette répétabilité est estimée à l'aide de la déviation standard du coefficient de multiplication moyen obtenu.

La déviation standard de l'estimation moyenne est calculée en utilisant la déviation standard, s , de la distribution des valeurs de k obtenues :

$$s = \sqrt{\frac{1}{(G - D - 1)} \sum_{i=D+1}^G (k_i - \bar{k})^2} \quad 2.7$$

Pour un calcul Monte-Carlo valide, l'intervalle de $k_{\text{moyen}} - s$ à $k_{\text{moyen}} + s$ devrait inclure le résultat précis du k_{eff} dans 68% des cas. Le résultat final d'un calcul Monte-Carlo devrait être présenté comme suit :

- $\bar{k} \pm \sigma$ pour un intervalle de confiance de 68%
- $\bar{k} \pm 2\sigma$ pour un intervalle de confiance de 95%
- $\bar{k} \pm 2.6\sigma$ pour un intervalle de confiance de 99%.

Ces pourcentages se réfèrent à la probabilité que la vraie valeur de k moyen soit dans l'intervalle de confiance.

MCNP a trois estimateurs différents du coefficient de multiplication effectif : collision, absorption et longueur de trace entre les collisions.

Une moyenne des trois est utilisée pour donner le résultat final du k_{eff} (consulter le chapitre 2 de la documentation MCNP, p2-150 ou encore p196, [52]).

D'un point de vue pratique, un calcul de criticité dans MCNP est réalisé avec la carte physique KCODE, la source initiale est définie comme suit :

- on fixe un nombre de cycles inactifs pour propager les neutrons sans suivi de leur historique et pour obtenir une convergence de source des fissions dans la géométrie ;
- on fixe un nombre de cycles actifs pour tenir compte de toutes les histoires des neutrons et calculer le coefficient de multiplicateur k du système ;
- on donne un nombre de neutrons N par cycle.

Afin d'assurer une convergence statistique des calculs de réacteur que nous présentons dans cette thèse, nous avons dans chaque cas préparé une source par un premier calcul Monte-Carlo dédiée avec la géométrie considérée. Cette source sera utilisée par la suite pour tous les calculs MCNP(X) à réaliser pour la géométrie considérée. Pour préparer une source, un nombre de particules suffisant est nécessaire, de l'ordre de 50000 à 100000 particules, ainsi qu'un grand nombre de cycles inactifs (quelques centaines est un nombre minimum [57]) [52].

2.1.2.3. Résultats dans MCNP

Les résultats dans MCNP sont calculés en insérant à la fin du fichier d'entrée des « accumulateurs » d'histoires des particules, appelés tallies.

Dans un calcul de MCNP, tous les tallies sont normalisés par neutron source. Le code MCNP ne donne pas l'évolution du combustible pendant le calcul mais seulement le flux moyen, le taux de réaction moyen et la section efficace moyenne. Le flux moyen est intégré sur l'énergie et normalisé par neutrons source simulés N_s dans la cellule ou d'un groupe de cellules avec le volume V où a lieu l'interaction :

$$\langle \Phi \rangle = \frac{1}{N_s} \frac{\sum_i \Phi_i(E_i) V_i}{V_i} \quad 2.8$$

Les taux de réaction sont importants et indispensables pour résoudre les équations de Bateman, et ainsi, effectuer l'évolution du combustible. Le taux de réaction moyen dans une cellule ou d'un groupe de cellules s'exprime comme :

$$\langle \sigma \Phi \rangle^{i,j} = \frac{1}{N_s} \frac{\sum_i \sigma_i^j(E_i) \Phi_i(E_i) V_i}{V_i} \quad 2.9$$

avec $\langle \sigma \Phi \rangle^{i,j}$ le taux de réaction moyen du noyau i pour telle réaction j dans la cellule et $\sigma_i^j(E_i)$ la section efficace de la réaction j du noyau i .

La section efficace moyenne peut être extraite de MCNP d'une manière simple en faisant le rapport entre le taux de réaction moyen et le flux moyen :

$$\langle \sigma \rangle^{i,j} = \frac{\langle \sigma \Phi \rangle^{i,j}}{\langle \Phi \rangle} \quad 2.10$$

Les principaux types de tallies dans MCNP que nous aurons utilisé lors de ces travaux de thèse sont les tallies de flux à travers une surface (f2), ou surfacique moyennes sur une cellule de la géométrie (f4), ou encore des tallies de dépôt d'énergie pour les spectres photoniques (ft8).

Les résultats des tallies de MCNP sont accompagnés d'un second nombre R , qui représente l'erreur relative estimée, définie comme étant une déviation standard estimée de la moyenne divisée par la moyenne estimée. Ce calcul tient compte de la corrélation entre des contributions variées à un tally provenant de la même histoire sont corrélées. Pour une simulation au comportement normal, R est proportionnel à $\frac{1}{\sqrt{N}}$ où N est le nombre d'histoires. L'erreur relative estimée peut être utilisée pour former des intervalles de confiance (comme mentionné dans le paragraphe sur les calculs KCODE ci-dessus).

R doit être généralement au moins inférieur à 0.10 pour produire des intervalles de confiance fiables. L'utilisateur doit cependant s'assurer également que toutes les régions de l'espace des phases de la simulation ont été prises en compte dans le calcul (=> les particules se sont propagées suffisamment dans toutes les cellules).

Il peut arriver parfois qu'un chemin important pour les résultats physiques ne soit pas échantillonné assez souvent par la simulation, ce qui rend la validité des intervalles de confiance caduque. MCNP calcule un nombre appelé Figure Of Merit (FOM) pour un bin par tally en fonction du nombre d'histoires et imprime les résultats dans la charte de fluctuations des tallies, Tally Fluctuation Chart (TFC), à la fin de la sortie.

La FOM est définie comme :

$$FOM = \frac{1}{\sqrt{R^2 T}} \quad 2.11$$

où T est le temps de calcul de l'ordinateur en minutes.

La FOM devrait être à peu près constante quand N augmente puisque R^2 est proportionnel à $1/N$ et T proportionnel à N. Une table juste avant la TFC résume les résultats de toutes ces vérifications pour tous les tallies du problème. 10 tests statistiques sont effectués et résumés dans la table 160 après chaque tally, avec un critère de réussite ou non.

2.2. Le code MURE

Le code MCNP ne fait pas l'évolution temporelle des concentrations des noyaux. C'est la raison initiale de la création du code MURE qui réalise un calcul d'évolution en intégrant les équations de Bateman sur un intervalle de temps donné (un pas d'évolution). MURE est un ensemble d'outils C++ qui permet, entre autres, d'effectuer des calculs d'évolution des réacteurs nucléaires avec le code probabiliste MCNP. Le code MURE est développé initialement par le LPSC Grenoble et l'IPN d'Orsay pour faciliter l'utilisation du code MCNP pour simuler différents concepts de réacteurs innovants. Les fonctions principales de MURE sont :

- la définition du fichier MCNP : la géométrie, les matériaux et les cartes physiques
- la construction du réseau des réactions ou désintégrations des noyaux par la création de l'arbre des filiations
- les calculs d'évolution pour le combustible par la résolution des équations de Bateman
- une interface graphique MureGui qui facilite l'exploitation des résultats

MURE permet également de faire des calculs thermo-hydrauliques [58] et ses fonctionnalités sont actuellement développées pour bientôt permettre le calcul des photons, bêtas et alphas émis par le combustible nucléaire [59].

Dans un réacteur nucléaire, les concentrations isotopiques sont reliées les unes aux autres via les processus : fission, capture neutronique, décroissance radioactive et autres réactions avec les neutrons (capture radiative, $(n, 2n)$, ...). L'équation de Bateman traduit la variation de la concentration d'un isotope en termes de disparition et d'apparition. C'est une équation différentielle du premier ordre, qui prend la forme suivante :

$$\frac{d}{dt}N_i = \underbrace{-(\lambda_i + \sigma_i\phi)N_i}_{\text{disparition}} + \underbrace{\sum_j f_{j \rightarrow i}(\lambda_j N_j) + \sum_k g_{k \rightarrow i}(\sigma_k \phi N_k) + \sum_f Y_{if} \sigma_f \phi N_f}_{\text{apparition}} \quad 2.12$$

où :

N_i : le nombre de nucléides i

λ_i : constante de désintégration de nucléide i

σ_i : section efficace du nucléide i avec les neutrons

ϕ : flux des neutrons

$f_{j \rightarrow i}$: rapport de branchement de l'isotope j vers l'isotope i

$g_{k \rightarrow i}$: rapport de branchement de l'isotope k vers l'isotope i

Y_{if} : fission-yield (rendement de fission) de l'isotope f vers l'isotope i

Dans cette équation (2.12), le premier terme décrit la disparition des noyaux par fission ou décroissance radioactive. Le deuxième terme décrit l'apparition des noyaux également par fission et décroissance radioactive des autres produits de fission et la production directe à partir des fissions du combustible via les rendements de fission. Pour simuler l'évolution du combustible, il faut résoudre l'ensemble des équations de Bateman dans chaque cellule évoluant. Dans le code MURE, une méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 est utilisée [55].

Le principe général de calcul de MURE lors d'un calcul d'évolution est illustré sur la figure 2.2.1

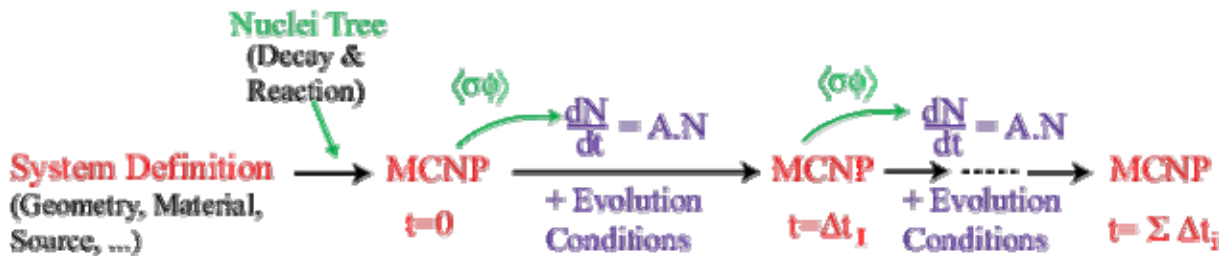


Fig. 2.2.1 : Principe général d'un calcul d'évolution dans MURE

2.2.1. Définition de géométrie pour MCNP

La première fonction de MURE peut être utilisée indépendamment. MURE permet de générer facilement la géométrie du MCNP avec la définition des classes : *Shape* et *Cell*. La classe *Shape* aide à décrire la forme de géométrie, simple ou complexe à base de sphères, plans, tubes... en utilisant l'intersection et/ou l'union de plusieurs formes. MURE permet également de déplacer une géométrie par translation et/ou rotation, voire de la copier pour créer une nouvelle géométrie de taille identique. La classe *Cell* complète la définition d'une cellule MCNP en ajoutant le matériau. La classe *Material* s'occupe de la déclaration de la proportion, de la densité et de la température du matériau. La capacité à prendre rapidement des modifications globales aux dimensions des composants du réacteur et la possibilité de créer de grandes réseaux de composants similaires sont deux caractéristiques importantes qui peuvent être mises en œuvre par l'interface C++

La source nécessaire pour le calcul de MCNP est définie par la classe *MCNPSource* dans MURE. Cette source peut être, soit la source statique utilisée pour le calcul critique avec KCODE, soit la source externe déjà générée par un calcul MCNP précédent.

Enfin, les tallies dans MCNP sont définis par la classe *Tally* dans MURE. Un tally contient :

- le type de tally : demande une grandeur dans la cellule ou la surface. Cela veut dire la dépôt d'énergie dans la cellule ou simplement un flux...
- la liste de tally : cette liste confirme les cellules appliquées pour le calcul de tally.
- le découpage en énergie : linéaire ou logarithmique.

2.2.2. Construction de l'arbre des filiations

Pour faire évoluer un matériau donné, il est essentiel de savoir à l'avance l'ensemble des noyaux qu'il peut produire ou dont il peut provenir par l'intermédiaire de réactions nucléaires successives et décroissances. Cette information vient de l'arbre des filiations (classe *NucleiTree*), qui contient les informations des liaisons entre tous les noyaux qui existent dans le tableau des nucléides. Les noyaux peuvent être transformés en d'autres noyaux par décroissance (β , α , capture électronique, etc) et les réactions nucléaires ((n, γ), (n, 2n), fission, etc). En général, un noyau particulier a des fils (les noyaux aux lesquels il peut se transformer) et des pères (les noyaux qui peuvent le produire). Pour calculer combien un noyau particulier est produit lors de l'évolution, il est essentiel de connaître les façons dont il peut être produit et les façons dont il peut être détruit. Il est nécessaire de définir l'arbre des filiations des tous les noyaux. (voir figure 2.2.2)

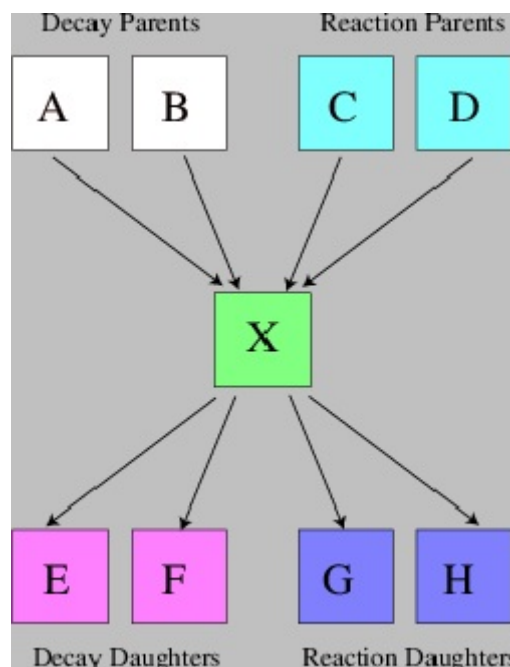


Fig. 2.2.2 : L'arbre des filiations d'un noyau X avec les multiples ascendants e descendants par décroissance ou réaction.

Dans MURE, des simplifications sont effectuées afin de réduire le temps de calcul selon les critères suivants :

- si la période $T_{1/2}$ du noyau est faible par rapport à T_{\min} (1 heure par défaut), le noyau est considéré comme l'intermédiaire et retiré de la chaîne de décroissance ou réaction est remplacée par son descendant dont la concentration est recalculée en conséquence.
- si pour une réaction i du noyau, la quantité Ξ_i (2.13) est inférieure à σ_{\min} (0,01 barn par défaut), cette réaction sera donc retirée dans l'arbre. Cette quantité Ξ_i est calculée par la formule suivante :

$$\Xi_i = \frac{\int \sigma_i d \log E}{\int d \log E} \quad 2.13$$

Cette fonction peut également être utilisée indépendamment à traiter des sections transversales pour MCNP à la température désirée.

2.2.3. Evolution dans MURE

La troisième fonction simule l'évolution du combustible dans un réacteur sur une période de temps courte donnée ou voire jusqu'à plusieurs années, par étapes successives de calcul MCNP et l'intégration numérique des équations de Bateman. Chaque temps de MCNP, la composition du combustible des réacteurs va changer en raison du processus de fission/capture/décroissance survenant à l'intérieur. Des changements dans la géométrie, la température, l'alimentation externe ou d'extraction au cours de l'évolution peut également être pris en compte. Évidemment, cette partie n'est pas indépendante de deux premières fonctions.

Simuler du combustible au cours du temps implique de résoudre les équations bien connues de Bateman pour chaque noyau donné dans chaque cellule donnée, pour laquelle l'évolution est souhaitée, et de les réaliser dans chaque pas de temps. Simuler le burn-up du combustible peut également impliquer d'ajuster la valeur du flux de neutrons à chaque pas de temps afin de garder constante la puissance du réacteur, ou d'ajuster la concentration de poison pour conserver une valeur donnée de k_{eff} , ... Chaque pas de temps d'évolution dans MURE est fourni par l'utilisateur.

Le schéma de calcul d'évolution dans MURE (fig. 2.2.1) est somme suivant :

- L'arbre des filiations est construit une fois pour tous les noyaux au premier calcul du MCNP. Il est contrôlé par l'intermédiaire de l'option *Material::SetEvolution()* qui doit être appelée pour chaque matériau évolué avant que toute définition de cellules soient faite. Ces compositions initiales de tous les matériaux sont entrées par l'utilisateur et ceux-ci évolueront automatiquement.
- Tous les tallies nécessaires pour le calcul des flux de neutrons et des sections efficaces de l'évolution dans les cellules sont créées automatiquement.
- Le fichier d'entrée MCNP avec la composition à temps t_i donné est construit et le calcul de MCNP est effectué.
- Les équations de Bateman sont résolues (méthode Runge-Kutta) en utilisant les flux et les sections efficaces du MCNP sur une période de temps Δt_i .
- Un nouveau calcul MCNP est effectué à partir des compositions des matériaux à $t_{i+1} = t_i + \Delta t_i$ et ainsi de suite.

Le temps t_i est choisi par l'utilisateur afin d'optimiser les phénomènes physiques à l'intérieur du combustible : effet Xénon, consommation du combustible...

Il existe dans MURE trois niveaux de discrétisation du temps :

- Le premier, Δt_i , est le pas de MCNP et donné par l'utilisateur. Pendant ce temps, les sections efficaces sont considérées constantes.
- Le deuxième, $\delta t_i = \frac{\Delta t_i}{N_{RK}}$, est la discrétisation de l'intervalle Δt_i : chaque Δt_i est divisé en N_{RK} pas de temps identiques (pas de Runge-Kutta). Par défaut, le nombre de pas N_{RK} est gardé à 10. A chaque temps $t_k = k\delta t_i$, les équations de Bateman sont construites avec les sections efficaces données. Les méthodes spéciales de contrôle de l'évolution pourrait être appelées à ces moments (e.x. le flux est renormalisé à maintenir la puissance constante, ...).
- Le dernier, dt_i , est automatiquement construit par la méthode d'évolution Runge-Kutta. Durant cet intervalle, les section efficaces et aussi les flux sont maintenus constants.

Tous les calculs d'évolutions dans MURE sont effectués à puissance constante mais ils ne peuvent être réalisés sous différents modes qui peuvent influencer les résultats :

- l'évolution avec un taux de réaction constant : c'est la valeur par défaut de MURE. Entre deux étapes de MCNP, le taux de réaction est gardé constant ; une nouvelle évaluation du taux de réaction est effectuée lors de prochain calcul MCNP pour l'étape suivant. En effet, les taux de réaction ne sont pas vraiment constants mais grâce à la renormalisation du flux en gardant la puissance constante et au réajustement périodique du taux de réaction pendant le calcul MCNP, le taux de réaction constant est une option suffisante pour nos calculs. Cette option nécessite d'ajuster le nombre de pas MCNPX de façon adaptée a l'évolution temporelle du système physique étudié. Nous utilisons ce mode d'évolution dans les simulations présentées dans ce manuscrit.
- l'évolution de section efficace : ce n'est pas une valeur par défaut. Le taux de réaction dans le précédent calcul MCNP est linéairement extrapolé pour le pas suivant.
- la méthode prédicteur-correcteur (PC): cette méthode peut améliorer la résolution de l'équation (2.9). Dans MURE, la section efficace moyenne constante est utilisée pour l'évolution par défaut entre deux calculs MCNP. La méthode PC permet en théorie d'améliorer la précision ou d'augmenter l'intervalle de temps entre deux calculs MCNP pour une même précision et ainsi de diminuer le temps de calcul.
- la méthode multigroupes : le flux de neutrons est construit pour chaque cellule évolante avec un binning fin en énergie. L'avantage de cette méthode est que le temps de calcul est réduit d'environ 30 fois. En effet, dans ce cas les taux de réaction ne sont pas calculés via des tallies de MCNP(X) mais par MURE avec le spectre en énergie des neutrons ainsi demande a MCNP(X). Par défaut, le binning en énergie est constitué de 17900 groupes. Nous avons utilisé cette méthode dans les travaux présentés dans cette thèse, et lorsque cela était possible nous avons sélectionné un nombre de groupes plus important (environ 10 fois plus), car des études ont montré [57] qu'avec ce nombre de groupes, les résultats obtenus différaient de moins de 1% d'un calcul sans option multigroupes (taux de réaction calculés par MCNPX).

2.2.4. Illustration graphique des résultats

Pour consulter les résultats de simulation dans MURE, l'interface graphique MureGui était construite sur le fond de l'outil graphique ROOT. MureGui relit les fichiers ASCII ou binaires dans le répertoire de sortie de simulations. Dans ces fichiers, MURE présente les résultats de chaque pas d'évolution défini par l'utilisateur : k_{eff} , l'inventaire du combustible, le flux moyen pour chaque cellule évoluant dans la géométrie, mais aussi des calculs de taux de réaction, de radiotoxicité, ... On peut consulter ces résultats en fonction des cellules de la géométrie si l'on a pris soin de préciser des 'variables spatiales' préalablement dans la simulation.

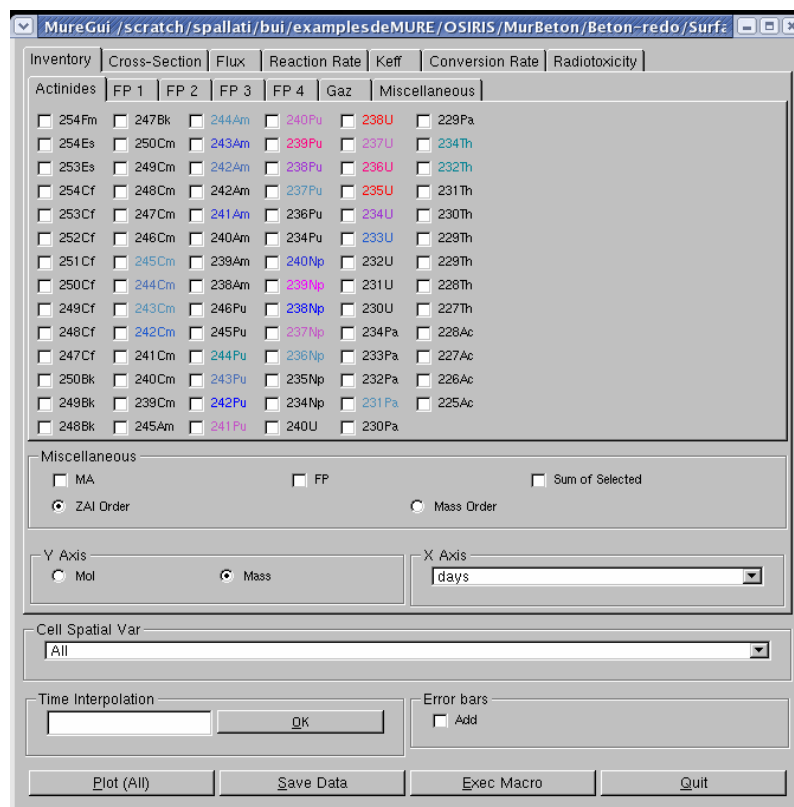


Fig. 2.2.3 : Interface graphique de MureGui

Chapitre 3 :

Réacteur CANDU et simulations pour la non-prolifération avec les antineutrinos

Les antineutrinos ont une section efficace d'interaction faible avec la matière faible (typiquement 10^{-20} barns). Mais le flux d'antineutrinos émis par un réacteur de type REP est approximativement $10^{21} \bar{\nu}_e / \text{GW}_{\text{th}}/\text{s}$. Pendant le fonctionnement normal d'un réacteur, à puissance constante, le nombre moyen d'antineutrinos, leur énergie moyenne et aussi la forme du spectre en énergie dépendent seulement de l'évolution de la composition du combustible. De même, à composition du combustible fixé, le flux d' $\bar{\nu}_e$ émis est proportionnel à la puissance thermique du réacteur. Les antineutrinos nous donnent non seulement une information sur la puissance thermique du réacteur mais aussi sur la composition du combustible.

Aujourd'hui, la détection d'antineutrinos pourrait peut-être constituer une méthode innovante pour lutter contre la prolifération nucléaire en fournissant des informations sur la composition du combustible presque en temps réel, et à distance.

Dans le cadre de ma thèse, j'ai simulé des canaux de réacteur CANDU, un réacteur connu par sa capacité de rechargement en ligne et potentiellement proliférant pour cette raison. Afin d'étudier les scénarii de rechargements possiblement proliférants, j'ai développé la simulation d'une grappe, puis de plusieurs canaux de réacteurs CANDU, rechargés à différentes fréquences. Je comparerai ensuite les prédictions des flux d'antineutrinos émis associés aux rechargements dits normaux et proliférants pour voir si la détection des antineutrinos peut permettre de détecter un détournement de matière fissile dans ces cas. L'intérêt de ces simulations est de respecter autant que possible les contraintes imposées par la physique des réacteurs, qui sélectionne naturellement les scénarios de détournement possible en termes de pilotage et de sûreté.

Dans la première partie de ce chapitre, je présente les caractéristiques principales des réacteurs de type CANDU. Je présente ensuite les simulations réalisées avec le code MURE. Enfin je termine le chapitre avec la présentation des résultats obtenus quant à l'émission des antineutrinos ainsi que leur capacité éventuelle à distinguer plusieurs scénarios.

3.1. Réacteur CANDU

De nombreux pays, en particulier le Canada, la France, la Grande-Bretagne, le Japon, mais aussi les Etats-Unis, la Suède, l'Allemagne, la Suisse, l'Inde, la Corée du Sud, la Chine... ont cherché à développer les réacteurs de puissance à eau lourde et ont construit des prototypes. Beaucoup de formules ont été étudiées mais une seule, développée par le Canada qui au départ n'a pas bénéficié des programmes militaires, peut concurrencer les réacteurs à eau légère. Le Canada, qui possédait d'abondants gisements d'uranium mais avait des moyens industriels limités et ne disposait pas de capacité d'enrichissement, s'est intéressé très tôt à l'eau lourde, dès la deuxième guerre mondiale, les spécialistes mondiaux, surtout français, du domaine s'y étant réfugiées. Il a poursuivi dans cette voie avec une continuité remarquable. La formule de réacteur qui a émergé de ces efforts est habituellement désignée sous le vocable de CANDU (CANAdian Deuterium Uranium). Cette filière est caractérisée par :

- l'utilisation d'eau lourde à la fois comme modérateur et comme caloporteur ;
- une structure de tubes de force horizontaux ;

- un combustible à uranium naturel, rechargé en ligne pendant le fonctionnement du réacteur.
- une très bonne utilisation de l'uranium et un coût de cycle de combustible particulièrement bas ;
- un possible extraction massif de plutonium (risque de prolifération).

Des réacteurs de conception canadienne ont été construits depuis dans plusieurs pays surtout au Canada et en Inde. L'Inde poursuit actuellement le déploiement de sa flotte de réacteurs à eau lourde.

Les réacteurs à eau lourde présentent en effet des caractéristiques intéressantes pour ces pays :

- la production d'eau lourde est une technologie relativement simple et abordable en terme d'investissement ;
- la conception des tubes de force permet de s'affranchir d'une autre technologie lourde, celle des grandes cuves épaisses qui équipent les réacteurs à eau légère ;
- l'uranium naturel évite le recours à l'enrichissement qui nécessite la mise en œuvre d'une technologie lourde et coûteuse, autrement dit une perte d'indépendance au niveau du combustible.
- Une bonne utilisation de la matière fissile et un cycle du combustible économique et simple, liées à l'utilisation de l'uranium naturel et au rechargement en ligne.

Par contre, les réacteurs CANDU souffrent de quelques défauts et présentent toujours des risques sous forme de la prolifération :

- le coût d'investissement pour le système de fabrication de l'eau lourde est important ;
- la facilité de fabrication des éléments combustibles, le rechargement en ligne à un taux d'irradiation faible, la quantité importante de plutonium de qualité militaire dans les éléments déchargés, tout cela présente un potentiel de prolifération.

3.1.1. Eau lourde

L'eau lourde est le meilleur des modérateurs : son utilisation conduit au meilleur compromis entre le pouvoir de ralentissement et la capture neutronique.

L'eau lourde absorbe un petit nombre de neutrons mais n'est pas aussi efficace que l'eau légère pour les ralentir. C'est pourquoi pour la même puissance de sortie, un réacteur à eau lourde est plus grand qu'un réacteur utilisant l'eau légère comme modérateur comme montré dans le tableau 3.1.1.

Modérateur	Nombre moyen de collisions pour le ralentissement	σ_s (barns)	σ_a (barns)
H ₂ O	20	103	0.664
D ₂ O	36	13.6	0.001
C	115	4.8	0.0034

Tableau 3.1.1 : Caractéristique de quelques modérateurs [60].

En tant que caloporteur, l'eau lourde a des propriétés thermohydrauliques très proches de celles de l'eau légère, comme montré dans le tableau 3.1.2.

		Eau légère	Eau lourde
Point de congélation	(°C)	0,0	3,8
Point d'ébullition	(°C)	100,0	101,5
Température critique	(°C)	374,2	371,1
Pression critique	(MPa)	22,11	22,14
Densité à 25°C	(g/cm ³)	0,997	1,104

Tableau 3.1.2 : Propriétés physiques de l'eau lourde [60].

L'eau lourde est un matériau cher (environ 400 à 500 US \$ par kilo, aux conditions économiques en 2005) [61]. Du tritium se forme par bombardement neutronique du deutérium, au bout de trente ans de fonctionnement, la concentration en tritium dans le modérateur atteint 50-100 Ci/litre. Elle est moindre dans le caloporteur mais les risques de fuite sont plus grands du fait de la pression.

3.1.2. Uranium naturel

L'utilisation de l'eau lourde comme modérateur du fait de ses qualités neutroniques rend possible de directement utiliser l'uranium naturel, ce qui explique l'intérêt pour ce type de réacteur. La recherche de bilan de réactivité maximal implique le choix de l'eau lourde comme caloporteur du fait de sa faible section efficace de capture mais quand même induit un surcoût non négligeable et impose une protection contre les fuites de tritium.

L'utilisation de l'uranium naturel demande aux réacteurs Candu, pour une puissance presque égale par rapport à un réacteur à eau légère, un rapport de modération plus grand : $V_m/V_u \approx 16$ ($V_m/V_u \approx 2-3$ pour réacteur à eau légère). Cette exigence impose donc un volume important d'eau lourde, ce qui augmente le réflecteur radial, donc l'économie des neutrons.

A cause de l'utilisation de l'uranium naturel, il faut éviter le plus que possible la présence de matière absorbante dans la zone de flux de neutrons.

La faible marge de réactivité dégagée par l'utilisation d'uranium naturel, impose un renouvellement continu du combustible, donc en ligne, sans arrêter le réacteur. On obtient, à tout moment, un équilibre de l'irradiation, ainsi qu'une réactivité maintenue à un niveau faible mais suffisant pour pallier le renouvellement du combustible.

En outre, l'utilisation de l'uranium naturel rend possible une plus grande production de plutonium, qui fournit environ la moitié de l'énergie produite par fissions durant le cycle.

3.1.3. Tubes de force

La fabrication d'une calandre sous haute pression associée à une grande puissance constituait presque une impossibilité technologique pour le Canada après la seconde guerre mondiale. Les canadiens se sont alors réorientés rapidement vers un nouveau concept qui a permis le regroupement du combustible au centre de la cellule ce qui a conduit à fractionner la grande enceinte de pression, épaisse, en un grand nombre de petites enceintes, de faible

épaisseur, dits tubes de force. Le réacteur contient ainsi un ensemble de canaux, mis en parallèle, comprenant chacun un tube de force, des éléments combustibles et un caloporteur, chaud et en pression. Ces canaux sont placés dans le modérateur qui peut être maintenu froid et pratiquement à la pression atmosphérique et donc contenu dans une cuve de faible épaisseur dite calandre.

Un certain nombre de caractéristiques vont directement découler de cette conception en tubes de force :

- Le modérateur, séparé du circuit primaire chaud et en pression, peut être froid et à une pression très faible, pratiquement à la pression atmosphérique. Cette disposition a plusieurs avantages :
 - un modérateur froid, au niveau de la neutronique, est plus intéressant : la réactivité se trouve augmentée.
 - du fait de l'absence de pression, le maintien de l'étanchéité du circuit de modérateur se trouve facilitée.
 - par contre, il est plus difficile de récupérer l'énergie dissipée dans le modérateur et le réflecteur (environ 5% de la puissance thermique) [62]. Donc, il contribue à la réduction du rendement total de l'installation.
- Du point de vue de la sûreté, le modérateur froid constitue une source froide importante « passive » ;
- La surveillance de l'étanchéité de chacun des tubes de force est possible en continu et en marche grâce à l'installation des dispositifs de capteurs d'humidité sur le circuit de CO₂ qui circule dans l'espace entre le tube de force et le tube de calandre. En cas de perte d'étanchéité d'un élément combustible, le dispositif en canaux individualisés permet de localiser rapidement le canal concerné afin de limiter la contamination des circuits.
- En cas d'accident de perte de réfrigérant primaire, la fonction de modération ne sera pratiquement pas affectée, du fait de la séparation du modérateur et caloporteur. La disparition du caloporteur va réduire les absorptions totales à l'intérieur de la cellule et donc entraîner une augmentation de la réactivité (coefficient de vide positif). Le complément du coefficient de vide contribue :
 1. soit à augmenter le rôle joué par le caloporteur dans la modération totale en réduisant la quantité de modérateur, ce qui conduit à sous-modérer le réseau par rapport à l'optimum neutronique.
 2. soit à réduire la part relative prise par le caloporteur dans l'absorption totale du canal en augmentant la part prise par le combustible, ce qui conduit à enrichir ce combustible. On peut d'ailleurs dire que la sous-modération du réseau impose pratiquement d'enrichir le combustible.
- Le rechargement en continu permet également d'optimiser le facteur de forme de la puissance tant radialement qu'axialement.

3.1.4. Rechargement du combustible d'un réacteur CANDU

Le rechargement d'un réacteur CANDU est effectué toujours dans deux sens grâce au système de manutention afin d'aplanir le flux neutronique. En bout de canal, on trouve tout d'abord un bouchon de protection biologique puis un bouchon d'étanchéité, manœuvrable en marche du réacteur, de façon à permettre l'accès à l'intérieur du canal, lors d'un rechargement du combustible. Le cœur neuf atteint son équilibre en moins d'un an. La fréquence de rechargement de chaque canal peut être différente et ainsi son burnup de sortie. Avec une fréquence de rechargement de 8 grappes sur 12 (voir la figure 3.1.1), un tiers des grappes

restera 2 fois plus longtemps en cœur, mais étant situées en bout de canal, elles subissent un flux de neutron moindre. En moyenne 2 canaux sont recharges par jour, par deux tiers ou par tiers. Ces caractéristiques permettent au réacteur CANDU à tout moment de recharger/décharger du combustible, ce qui suscite l'intérêt de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) qui surveille étroitement les rechargements en comptant le nombre d'emplois de la machine de manutention. C'est cet intérêt de l'AIEA pour les réacteurs CANDU et généralement pour les réacteurs rechargeables en ligne, manifesté des la première réunion organisée en 2003 à Vienne et confirmée en 2008 lors de la seconde réunion [63], qui nous a incités à développer des simulations prenant en compte la physique d'un réacteur CANDU et permettant d'évaluer la sensibilité de la détection des antineutrinos à des variations dans les fréquences de rechargements.

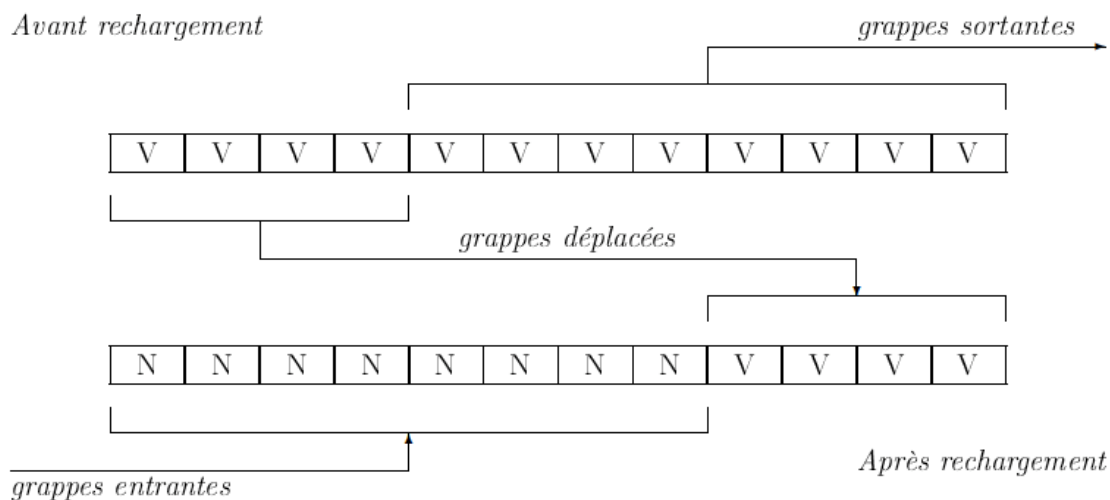


Fig. 3.1.1 : Rechargement d'un canal de réacteur CANDU, par 8 grappes dans cet exemple (N : grappe neuve, V : grappe vieille), figure extraite de la thèse de P. Guillemin [64].

Dans la partie qui va suivre, je vais introduire la simulation que j'ai développée ; tout d'abord une grappe de combustible d'un réacteur CANDU puis un canal complet, pour les études de prolifération dans le cadre de cette thèse.

3.2. Simulation d'une grappe de combustible du réacteur CANDU

Une grappe de combustible d'un réacteur CANDU-600 comporte 37 éléments, disposés en anneaux circulaires comme indiqués dans la figure 3.2.1. Chacun de ces éléments est fabriqué à partir de l'uranium naturel sous forme de granules cylindriques de dioxyde d'uranium frittés, contenus dans une gaine de Zircalloy 4 fermée aux extrémités par un bouchon de Zircalloy 2 [62]. Les 37 éléments sont fixés les uns aux autres par des grilles aux extrémités pour former une grappe de combustible.

La première simulation d'une grappe du réacteur Candu a été effectuée avec la version MCNP-5 et MURE : Une source propagée est créée pour réduire le temps de calcul. Cette source est caractérisée par 20000 particules source, 1000 cycles actifs et 500 cycles inactifs. Ensuite, j'utilise cette source comme une source initiale dans la simulation d'une grappe avec la condition : 20000 particules source, 700 cycles actifs et 100 cycles inactifs. Le traitement thermique de l'eau $S(\alpha, \beta)$ et l'option SetMultigroupDecade(10) ne sont pas pris en compte dans cette simulation. La base de données utilisée pour la simulation est ENDF-B6.

3.2.1. Géométrie simulée

Dans un réacteur CANDU réel, un canal de combustible comprend 12 grappes de combustible. Ici, on va tout d'abord réaliser la simulation d'une seule grappe pour avoir des résultats permettant de tester les choix de neutronique. Les dimensions nécessaires à la simulation d'une grappe sont présentées dans le tableau 3.2.1, prises dans les données de l'AECL (Atomic Energy of Canada Limited) [65] et dans l'article de S. Yu [62].

Pas élémentaire	28.575 cm
Rayon de calandre	6.59 cm
Rayon du gaz inerte	6.45 cm
Rayon du tube de force	5.588 cm
Rayon du caloporteur	5.12 cm
Rayon des gaines	0.655 cm
Rayon des crayons de combustible	0.612 cm
Longueur des crayons	50 cm

Tableau 3.2.1 : Dimensions d'une grappe de combustible [62], [64].

Les matériaux utilisés et leurs caractéristiques sont le Zircalloy-2 pour le tube de calandre, le Zircalloy-4 pour la gaine de combustible et le Zr-Nb pour le tube de force. L'espace annulaire entre le tube de force et celui de calandre est rempli par du CO_2 . Le tableau 3.2.2 détaille les températures et densités de ces matériaux.

Structures	Composition	Densité (g/cm^3)	Température (K)
Combustible	$\text{U}_{\text{nat}}\text{O}_2$	10.6	1100
Gaines	Zircalloy-4	6.56	600
Caloporteur	D_2O	0.8	600
Modérateur	D_2O	1.106	300
Tube de force	Zr-Nb	6.55	600
Calandre	Zr-2	6.56	300
Gaz inerte	CO_2	0.002	300

Tableau 3.2.2 : Caractéristiques des structures dans la simulation d'une grappe de combustible d'un réacteur CANDU [62], [64], [66].

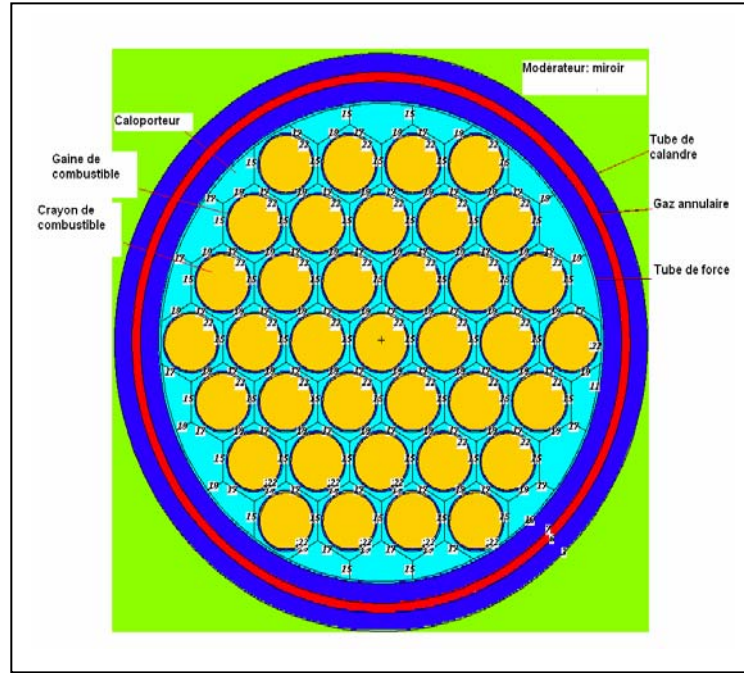


Fig. 3.2.1 : Profil de la grappe simulée du réacteur CANDU

La première étape est de simuler une grappe entourée par un miroir, c'est à dire le cas d'un réacteur complet, infini et sans fuites. En effet, le miroir empêche les neutrons de fuir à l'extérieur, donc il n'y a pas de pertes, c'est le cas d'un réacteur infini. J'ai calculé le rapport de modération d'une grappe afin qu'il soit le même que celui d'un réacteur.

La source utilisée pour la simulation d'une grappe est une source propagée lors d'une première simulation dans la géométrie afin de s'assurer que les neutrons sont bien répartis dans le volume de la grappe.

Le calcul de la position du miroir est décrit dans les équations 3.2 à 3.6. Le rapport de modération est donné par l'équation 3.1 à partir de calcul avec les données dans le tableau 3.2.1.

$$\left(\frac{V_m}{V_c} \right) = 15,6 \quad 3.1$$

avec m : modérateur et c : combustible

D'où :

$$\begin{cases} V_c = N_{grappe} (V_c)_{grappe} \\ V_m = V_{miroir} - V_{Tube-Calandre} \end{cases} \quad 3.2$$

$$\Rightarrow \frac{V_{miroir} - V_{Tube-Calandre}}{N_{grappe} (V_c)_{grappe}} = 15,6 \quad 3.3$$

$$\Leftrightarrow \frac{a^2 L_{\text{miroir}} - \pi R_{\text{Tube-Calandre}}^2 L_{\text{miroir}}}{N_{\text{grappe}} \pi R_{\text{grappe}}^2 L_{\text{grappe}}} = 15,6 \quad 3.4$$

$$\text{avec } L_{\text{miroir}} = L_{\text{grappe}} \quad 3.5$$

Donc,

$$a_{\text{miroir}} = \sqrt{15,6 \pi N_{\text{grappe}} R_{\text{grappe}}^2 + \pi R_{\text{Tube-Calandre}}^2} \quad 3.6$$

avec : a_{miroir} est le côté de miroir dans le cas de miroir carré.

Dans le fichier d'entrée de MURE, afin de coder les crayons de combustible dans la grappe, on va introduire la notion de pavage ou encore réseau. Le pavage peut être un carré ou un hexagone selon les cas. Dans cette simulation, le pavage est un hexagone. Le pavage contient dans chaque maille le crayon de combustible et le caloporteur qui sont l'un dans l'autre.

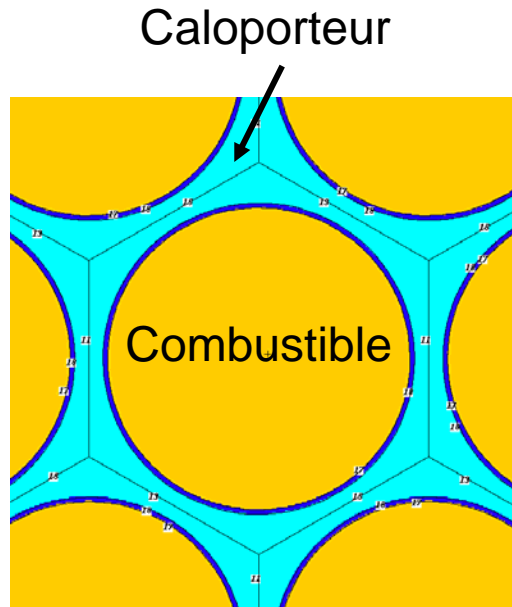


Fig. 3.2.2 : Un pavage d'un crayon combustible dans une grappe.

La puissance thermique de la grappe est toujours maintenue à 450 kW tout au long de l'évolution. En se servant des bibliothèques neutroniques disponibles à SUBATECH, on a la disposition des valeurs de sections efficaces pour les températures 300°K, 600°K, 900°K et 1200°K dans la base de données ENDF_B6, que l'on va appliquer aux composants d'une grappe. Concrètement, la température de modérateur, du tube de calandre et du gaz annulaire est de 300°K, 600°K pour le tube de force, le caloporteur et la gaine du combustible et enfin, de 1200°K pour le combustible lui-même.

Le temps de simulation choisi est de 300 jours. Nous devons également choisir correctement les pas de temps de l'évolution afin de rendre compte correctement de l'effet Xénon. L'effet Xénon joue un rôle important dans le pilotage du réacteur car le Xénon présente la caractéristique d'absorber les neutrons avec une grande section efficace. C'est un effet négatif [66].

Après avoir réalisé ce début de simulation, nous nous sommes référés à la publication d'Alexis Nuttin et al. [66] afin de choisir une discrétisation radiale et axiale adéquates à nos objectifs d'étude.

Dans la simulation, on ne prend pas en compte la dépendance axiale du flux le long du canal de combustible mais on va tenir compte de la distribution des crayons de combustible à l'intérieur d'une grappe [66]. A. Nuttin et al. ont réalisé une étude systématique en discrétisant la grappe en employant un nombre différent de couronnes. A partir de 3 couronnes les résultats physiques restent inchangés. Ce nombre de couronnes est donc suffisant pour rendre compte de l'autoprotection. Les 37 crayons de combustible sont séparés dans notre simulation en 3 couronnes de 7, 12 et 18 crayons qui sont respectivement en ordre de l'intérieur à l'extérieur (voir fig. 3.2.3). Ainsi l'effet de spectre sera bien pris en compte.

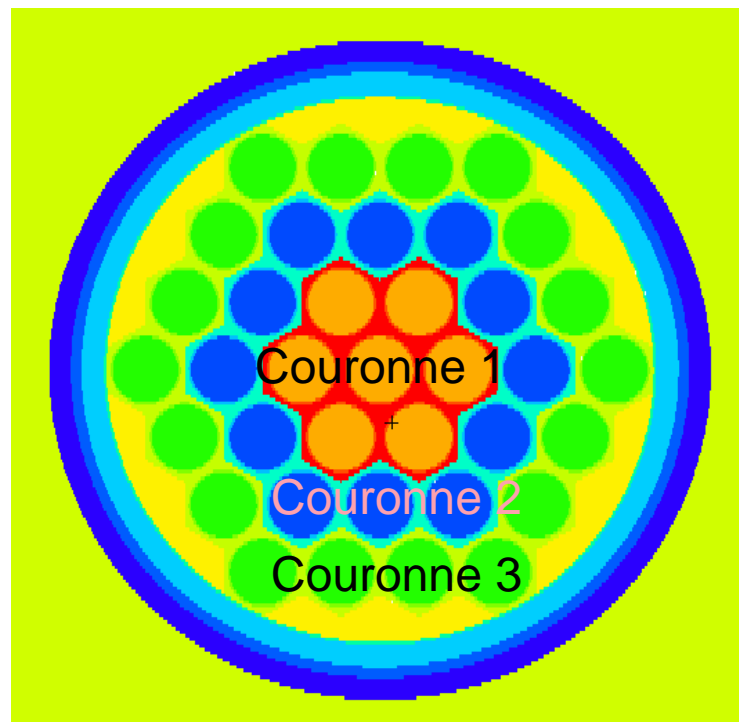


Fig. 3.2.3 : Profil d'une grappe de combustible avec la discrétisation radiale choisie.

3.2.2. Coefficients de contre-réaction

Les valeurs et signes des coefficients de contre-réaction associés à des changements de conditions de fonctionnement déterminent la sûreté du réacteur. En effet, si ces coefficients sont négatifs, de l'anti-réactivité est injectée dans le cœur associée à la variation considérée, dans le cas contraire c'est un surplus de réactivité. Ici nous nous intéresserons aux coefficients de vidange et Doppler.

3.2.2.1. Coefficient Doppler

L'effet de température, ou effet Doppler est un effet très important dans le fonctionnement d'un réacteur nucléaire. On essaie, en pratique, de concevoir des filières de réacteurs qui présentent un coefficient Doppler négatif : si la température croît, la réactivité décroît et vice versa. Cela assure une stabilité spontanée du réacteur et garantit un retour à la

normale en cas d'accident. Il est relié à la température du combustible. Sa définition est la suivante :

$$\frac{d\rho}{dT_{\text{combustible}}} = \frac{k_{\infty\text{final}} - k_{\infty\text{initial}}}{k_{\infty\text{final}} \times k_{\infty\text{initial}}} \frac{1}{(T_{\text{final}} - T_{\text{initial}})} \quad 3.7$$

L'effet Doppler dans un réacteur CANDU provient pour la plus grande part de l'uranium 238, présent en grande quantité. Son origine est l'absorption résonante des neutrons par ce dernier. L'agitation thermique dans le combustible amène un changement de largeur et de hauteur des pics de résonance. Une augmentation de température va élargir le pic mais diminuer sa hauteur en conservant son intégrale. Dans la théorie de ralentissement des neutrons, la largeur du pic est plus importante que la hauteur car la largeur va permettre à plus de neutrons d'être capturés, donc baisser la réactivité du réacteur, ensuite la puissance du réacteur et enfin la température du combustible.

Effet Doppler	
BOC (pcm/K)	-1.08
EOC (pcm/K)	-0.55

Tableau 3.2.3 : Effet Doppler dans une grappe de combustible du réacteur CANDU.

Le tableau 3.2.3 présente les coefficients Doppler obtenus avec notre simulation de grappe pour du combustible neuf. Les calculs ont été réalisés avec la bibliothèque ENDF_B6 à 1000 et 1200 K pour obtenir les coefficients à 1100 K. Dans les réacteurs CANDU, le coefficient Doppler est négatif, ce qui est le cas des valeurs obtenues. À mesure que la quantité de Plutonium augmente dans le combustible, celle-ci réduit l'effet de l'élargissement des résonances de l' ^{238}U et donc réduit l'augmentation des captures résonantes.

3.2.2.2. Coefficient de vidange

Le coefficient de vidange appelé CVR en Anglais (Coolant Void Reactivity) représente ce qui est souvent appelé l'effet de vide dans un réacteur nucléaire. Dans les réacteurs CANDU, en particulier, le modérateur et le caloporteur sont séparés. Pour cette raison, dans cette partie, je ne vais présenter que l'effet de vide du caloporteur qui aide à dégager la chaleur émise par le combustible.

Le caloporteur ne contribue pas beaucoup au ralentissement des neutrons mais sa perte réduit les absorptions neutroniques dans la cellule, ce qui va augmenter la réactivité. On a donc un effet de vide positif. Le coefficient de vidange s'exprime selon :

$$CVR = \rho_{\text{finale}} - \rho_{\text{initiale}} = \frac{k_{\infty}(d_{\text{finale}}) - k_{\infty}(d_{\text{initiale}})}{k_{\infty}(d_{\text{finale}}) \times k_{\infty}(d_{\text{initiale}})} \quad 3.8$$

Pour notre simulation nous obtenons les valeurs données dans le tableau 3.2.4. Pour obtenir ces valeurs, au pas en temps désiré de la simulation, la densité nominale du caloporteur de 0.8g/cm^3 est remplacée par 0.

Effet de vide	
BOC (pcm)	1601
EOC (pcm)	1067

Tableau 3.2.4 : Effet de vide dans une grappe de combustible de réacteur Candu.

Les valeurs que nous trouvons sont proches de celles trouvées par A. Nuttin et al. Notre simulation est un peu différente, car le volume de combustible considéré est un peu plus faible dans notre simulation à cause de différence de géométrie. Un bon résumé des contributions positives au CVR est donné dans Nuttin et al. [66]. Une description plus complète des contre-réactions d'un réacteur CANDU peut être trouvée dans [67]. D'abord le ralentissement se fait uniquement dans le modérateur et donc la traversée des zones de résonances épithermiques est moins probable proche du combustible. Cet effet augmente le facteur anti-trappe p . Les fissions provenant directement des neutrons données par les fissions dans les crayons voisins sont plus probables quand le caloporteur a disparu, ce qui augmente le facteur de fission rapide ϵ . A densité de D_2O nulle, on supprime les captures sur celui-ci, et donc on augmente le facteur d'utilisation thermique f . Les neutrons thermiques qui reviennent du modérateur ne sont plus chauffés par le caloporteur, ce qui augmente le facteur de reproduction η .

3.2.3. Résultats de simulation d'une grappe

La figure 3.2.4 présente le facteur de multiplication infini obtenu pour une simulation réalisée pour un combustible à 1100K. A $t=0$, la valeur du k_∞ dans MCNP est de 1.11635 ± 0.00011 , en bon accord avec les résultats de la thèse de P. Guillemin, dont la valeur du k_∞ est de 1.11719 ± 0.00064 , qui a réalisé une simulation aux paramètres similaires et utilise les codes MCNP et DRAGON [64].

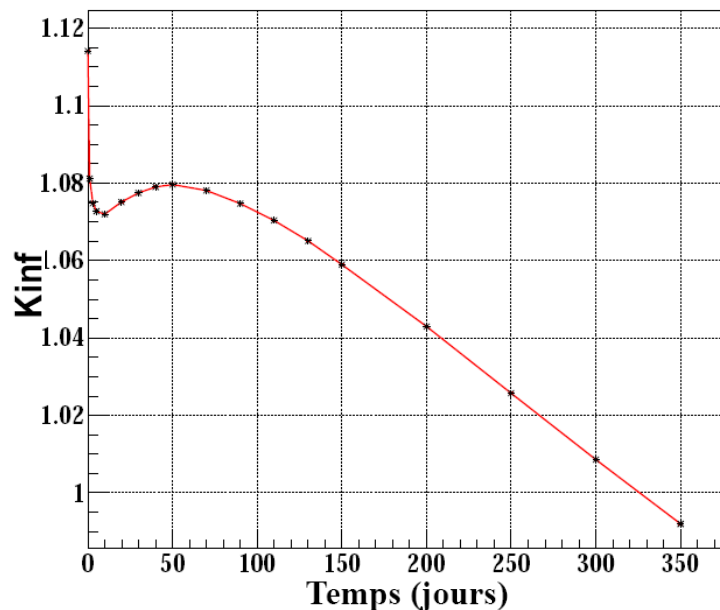


Fig. 3.2.4 : Facteur de multiplication d'une grappe de combustible.

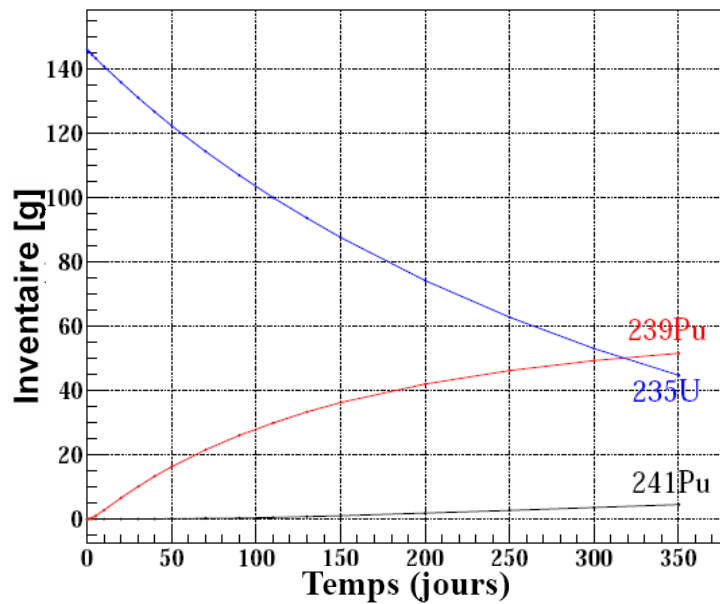


Fig. 3.2.5 : Inventaire d'une grappe de combustible.

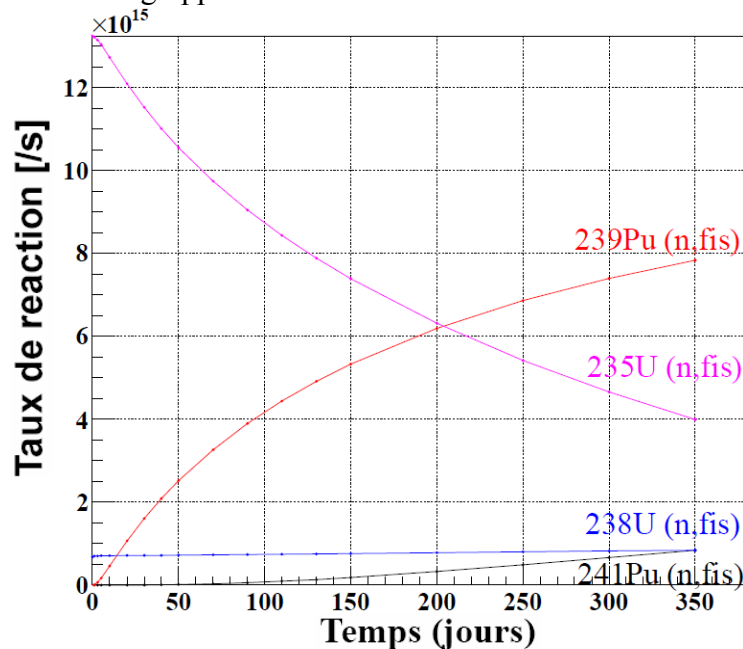


Fig. 3.2.6 : Taux de réaction d'une grappe de combustible.

On voit que, sur le facteur de multiplication, dans les premiers jours, l'augmentation de la concentration de Xénon pèse sur la réactivité en absorbant les neutrons. Ensuite, grâce à la fabrication de ^{239}Pu , suite aux captures neutroniques de l' ^{238}U , on observe une remontée du facteur de multiplication (cf. évolution de l'inventaire sur la figure 3.2.5). Cette augmentation de la contribution du ^{239}Pu aux fissions fait monter la réactivité dans la grappe dont le maximum se situe à environ de 50 jours. En effet, la section efficace moyenne de fission du ^{239}Pu est supérieure à celle de l' ^{235}U . La réactivité va rediminuer plus tard avec l'empoisonnement du combustible par les produits de fission qui vont absorber les neutrons.

Les taux de réaction des trois noyaux fissiles importants dans un réacteur Candu, ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu suivent la même tendance que les inventaires (figure 3.2.6).

La figure 3.2.7 montre les flux de neutrons dans 2 couronnes de la grappe simulée.

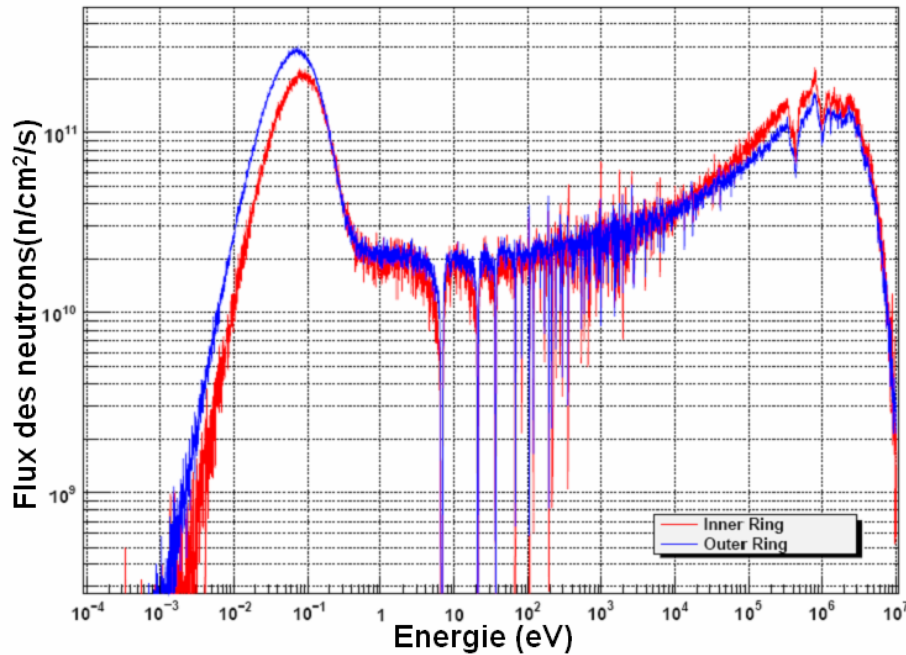


Fig. 3.2.7 : Spectre des neutrons dans la couronne extérieure et couronne intérieure.

La couronne extérieure voit plus de neutrons thermiques, ralentis par le modérateur, que la couronne intérieure. Le spectre de la couronne extérieure est donc plus thermique (en bleu sur la figure 3.2.7). Par contre, on voit le contraire dans la zone rapide où les neutrons rapides dominent pour la couronne intérieure. C'est le phénomène d'autoprotection. Dans la zone épithermique, le niveau de flux est inférieur dans la couronne interne.

3.3. Simulation d'un canal de 12 grappes de combustible

Dans la partie ci-dessus, je vous ai présenté la simulation d'une grappe de combustible avec un miroir pour représenter un réacteur homogène infini, sans fuites. Ensuite, j'ai étendu la simulation à un canal de combustible, qui contient normalement 12 grappes, afin d'être en mesure de simuler le rechargement d'un réacteur.

Dans cette simulation, la version MCNP-5 et MURE sont encore utilisées. Une source propagée est créée pour réduire le temps de calcul. Cette source est caractérisée par 50000 particules source, 1000 cycles actifs et 500 cycles inactifs. Ensuite, cette source est utilisée comme une source initiale dans la simulation d'un canal avec la condition : 20000 particules source, 700 cycles actifs et 100 cycles inactifs. Le traitement thermique de l'eau $S(\alpha, \beta)$ et l'option SetMultigroupDecade(10) sont pris en compte dans cette simulation pour plus de précision dans les simulations des antineutrinos émis. La base de données utilisée pour la simulation est ENDF-B6.

3.3.1. Géométrie simulée

La géométrie de canal est représentée sur la figure 3.3.1.

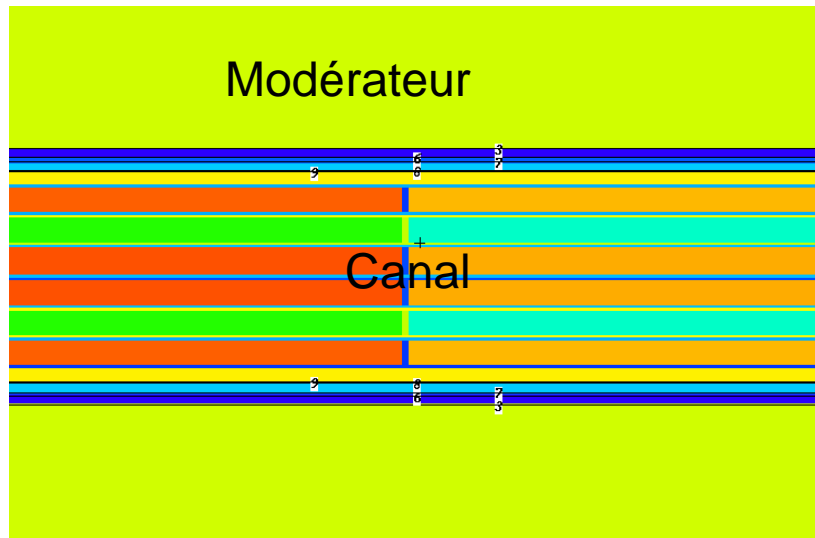


Fig. 3.3.1 : Une partie de géométrie du canal au joint de deux grandes grappes.

La géométrie d'un canal n'est pas très différente de celle d'une grappe sauf qu'un canal contient douze grappes de combustible. Pour simplifier la simulation et compte-tenu du fait que nous ne cherchons que des ordres de grandeur ici sur les taux de fission, nous avons fait l'approximation suivante : les grappes sont groupées par 4, négligeant ainsi les gaines entre grappes. Nous avons donc dans un canal trois grandes grappes dont chacune représente quatre petites. Cette approximation doit influencer peu sur la neutronique car l'épaisseur de la gaine entre 2 grappes est petite et le Zircalloy la constituant est sensé être transparent aux neutrons. La figure 3.3.1 montre la géométrie d'un canal à la jonction de 2 grappes. Les couleurs différentes symbolisent dans MCNPX les différentes cellules et les matériaux différents. Dans le canal 3 univers différents sont employés pour les 3 grandes grappes, afin de pouvoir simuler le rechargement du combustible par tiers du canal par la suite.

3.3.2. Résultats de simulation d'un canal de combustible

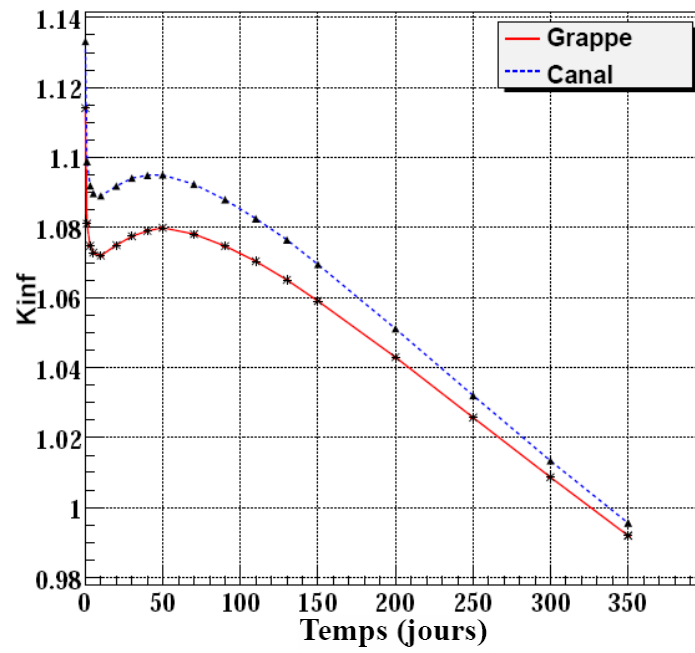


Fig. 3.3.2 : Comparaison le facteur de multiplication entre la grappe et le canal.

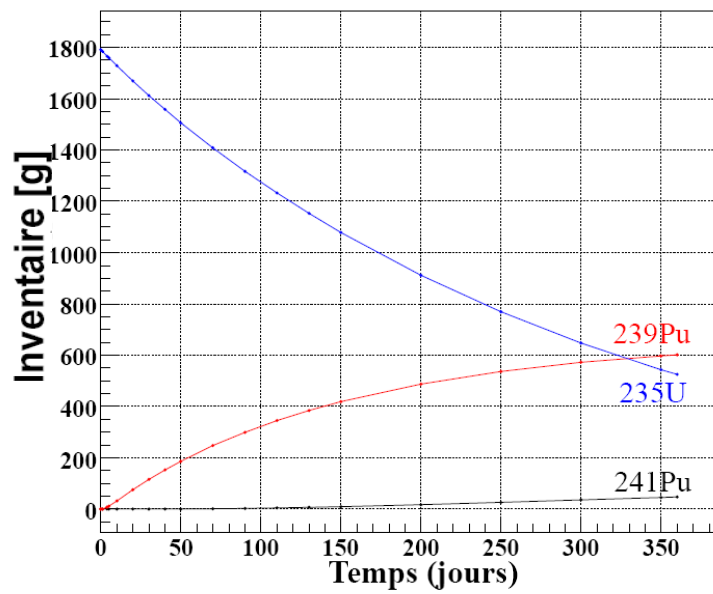


Fig. 3.3.3 : Inventaire d'un canal de combustible.

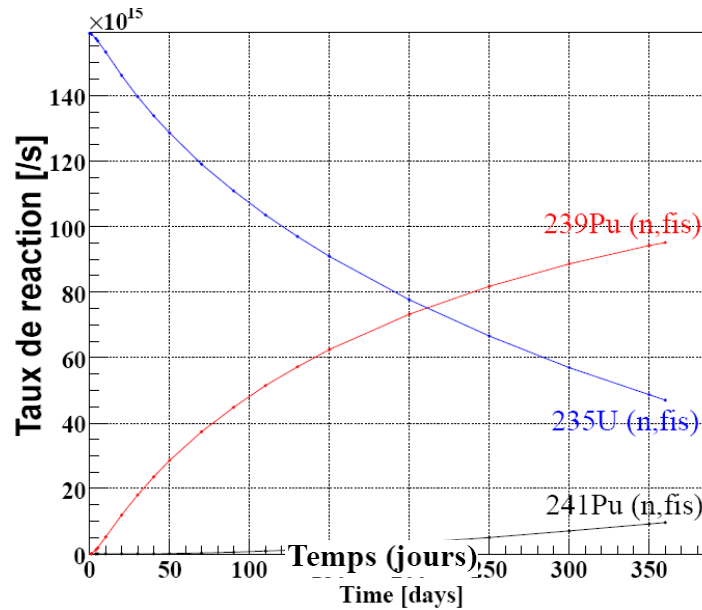


Fig. 3.3.4 : Taux de réaction d'un canal de combustible.

La figure 3.3.2 compare le facteur de multiplication d'une grappe et d'un canal. On peut voir un écart d'environ 2000 pcm entre eux en début de cycle et cet écart diminue avec le temps. La puissance d'un canal est gardée constante à 5,4 MW_{th} par rapport à 0,45 MW_{th} d'une grappe. La différence de réactivité provient d'une part du taux de réaction du canal qui est environ 1% plus élevé que celui d'une grappe et d'autre part de la propagation des neutrons. En effet, en sortant des extrémités d'une grappe interne au canal, les neutrons ne sont plus en contact avec l'eau lourde directement. Ils sont donc moins thermalisés et peuvent passer d'une grappe à l'autre ce qui augmente les fissions rapides du ^{239}Pu .

3.3.3. Discussions sur les fuites, les absorptions négligées, le temps de résidence...

En ne simulant qu'un seul canal pour estimer les propriétés moyennes du cœur, nous faisons l'approximation d'un cœur uniforme, sans prendre en compte la forme de la nappe de flux de neutrons. Cependant ces simulations sont les premières à prendre en compte la physique du réacteur pour estimer le flux d'antineutrinos émis. De plus il s'agit en premier lieu de calculer un ordre de grandeur de la sensibilité de la sonde antineutrinos. En effet, dans le cas d'un réacteur CANDU, dont la nappe de flux est uniformisée en permanence grâce au rechargement en ligne, le flux d'antineutrinos émis sera uniforme et le niveau de ce flux variera peu en fonction des conditions de gestion du réacteur. Il n'est pas donc pas acquis d'avance que la surveillance d'un réacteur CANDU avec la détection des antineutrinos est possible.

Afin de simuler le rechargement moyen d'un canal de CANDU en fonctionnement normal, nous devons déterminer le temps d'irradiation d'une grappe, sans avoir à simuler le réacteur complet. On peut utiliser pour cela la courbe d'évolution du k_{∞} comme expliqué dans Nuttin et al. [66] pour trouver au bout de quelle durée d'irradiation le k_{eff} du cœur correspondant serait égal à 1. Pour maintenir un cœur de CANDU critique, il faut que le surplus de réactivité des grappes neuves vienne compenser l'anti-réactivité des grappes

« vieilles ». On fait l'approximation que toutes les grappes se comportent de façon identique. Dans la simulation, on a négligé l'absorption par le bore, les fuites des neutrons et le poids des barres de contrôle. Nuttin et al. ont estimé les réactivités correspondantes. Ils ont estimé les fuites en réalisant une simulation MCNP simplifiée de cœur complet de réacteur CANDU. En faisant la différence entre le k_{eff} trouvé et le k_{∞} d'une grappe, ils trouvent quelque soit le pas en temps $3000 \text{ pcm} \pm 500 \text{ pcm}$. Le poids des absorptions négligées est d'environ 2000 pcm. La valeur du k_{∞} seuil est donc de 1.05. Cette valeur est atteinte au bout de 175 jours environ (cf. figure 3.2.4). Ce temps statique d'irradiation constitue le temps de rechargement. Un autre calcul réalisé par R. Chambon [68] en prenant en outre en compte la dépendance axiale du flux le long des canaux, donne un temps de rechargement de 220 jours environ. On peut également calculer par différentes méthodes le temps de cycle ou encore temps de résidence des grappes dans le cœur en moyenne pour une fréquence de rechargement donnée. Par ex. la ref [64] explique la méthode de la moyenne glissante qui consiste à égaliser les aires au-dessus et au-dessous de 1 de la courbe de k_{∞} . Dans la ref. [68], le temps de cycle associé au temps de rechargement T_{re} est obtenu en multipliant T_{re} par le rapport entre le nombre de grappes rechargées par canal sur le nombre de grappes total du canal. Dans notre cas le temps de résidence est donc 1.5 fois plus grand que le temps de rechargement. En appliquant cette méthode, valable parce que nous supposons que toutes les grappes ont le même comportement dans le cœur, nous trouvons des valeurs proches de R. Chambon [68] et de P. Guillemin [64]. On peut déduire de cette méthode le facteur de multiplication infini moyen de notre cœur : 1.047.

Pour simplifier le calcul de nos scénarios, nous allons par la suite considérer un réacteur CANDU hypothétique contenant 400 canaux (au lieu de 380 pour un CANDU-6), rechargées en moyenne tous les 200 jours par deux tiers. Ces conditions constitueront notre scénario de référence auquel nous comparerons des conditions de rechargement différentes, destinées à permettre le détournement de plutonium de meilleure qualité, qui constitueront des scénarios proliférants.

3.4. Simulation du rechargement d'un canal de combustible

3.4.1. Simulation du rechargement « normal » à 200 jours

Dans cette simulation, le canal est rechargé par 2/3 : 2/3 du combustible est remplacé par le combustible neuf à 200 jours d'irradiation et le combustible irradié de l'étape précédente est déplacé au fond du canal pour 1 cycle supplémentaire.

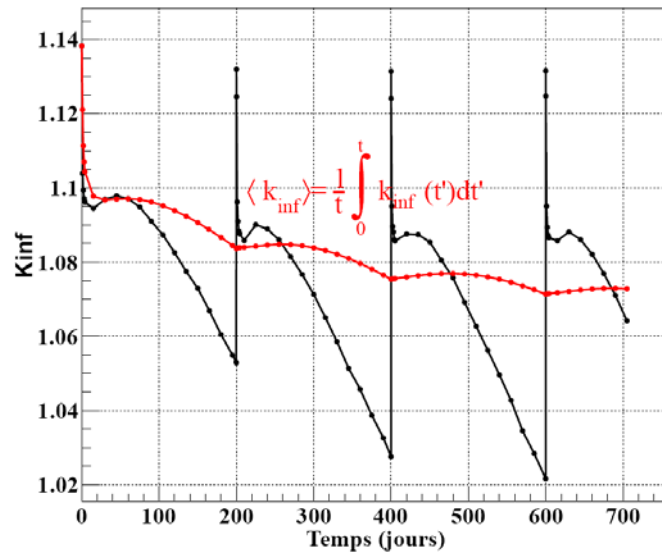


Fig. 3.4.1 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 200 jours.

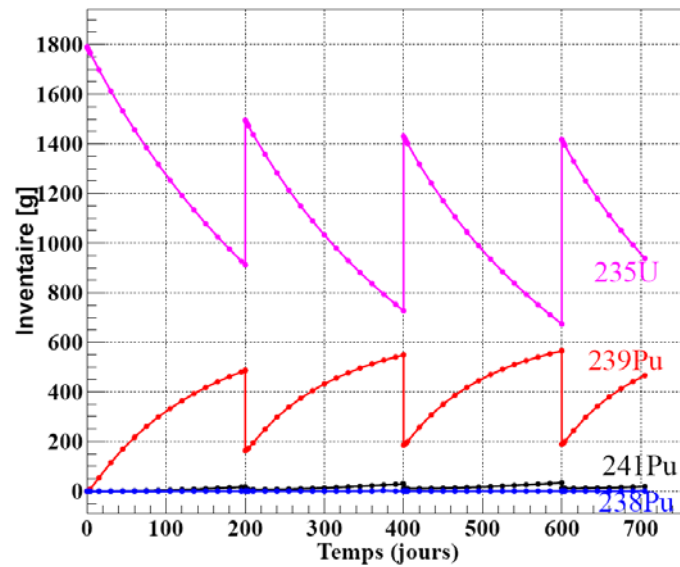


Fig. 3.4.2 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 200 jours.

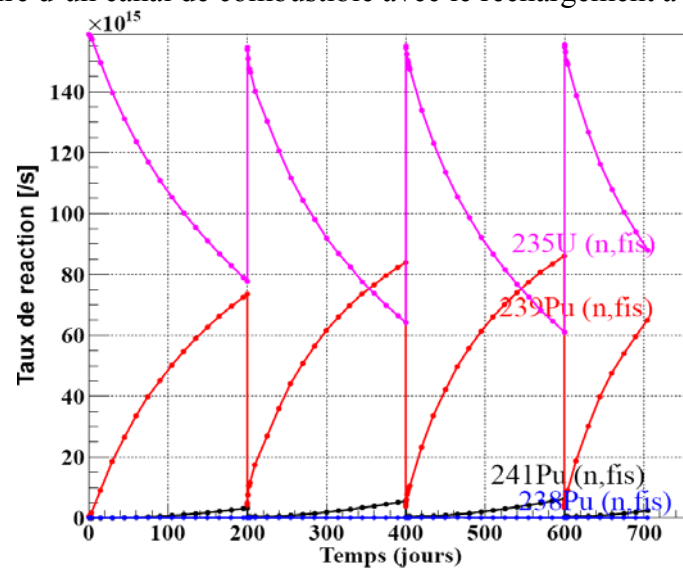


Fig. 3.4.3 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 200 jours.

On voit bien la périodicité du facteur de multiplication, de l'inventaire, et du taux de réaction sur les figures 3.4.1 à 3.4.3, quasiment à partir troisième cycle (deuxième rechargement). Au moment du rechargement, un saut du k_{inf} est clairement visible car le canal est rechargé par 2/3 de combustible neuf, donc, est injecté de l' ^{235}U et déchargé du ^{239}Pu . Pour cette raison, le pic du k_{inf} à partir deuxième cycle est toujours plus faible que celui du commencement. C'est plus clair si l'on regarde sur l'inventaire en ^{235}U et ^{239}Pu .

Sur la figure 3.4.1, on peut voir le k_{inf} moyen obtenu pour un canal rechargé tous les 200 jours, qui représente l'état moyen de tout le réacteur fictif considéré. Sa valeur est plus élevée que celle déterminée avec la simulation d'une seule grappe, pour les raisons exposées ci-dessus. Nous obtenons donc un k_{inf} moyen pour le cœur en mode de rechargement « normal » de 1.073 environ.

Afin d'étudier un scénario grossier de détournement de combustible avec un réacteur Candu, on va changer, dans les études suivantes, le temps de rechargement.

3.4.2. Simulation du rechargement « proliférant »

Sur la figure ci-dessous est montrée la dépendance du vecteur plutonium (le rapport entre la masse du ^{239}Pu sur la masse totale du plutonium) en fonction de temps pendant lequel le combustible réside dans le réacteur. Plus le combustible reste dans le réacteur longtemps, moins la proportion du ^{239}Pu est importante. Or pour l'Agence Internationale de l'Energie Atomique, ce vecteur Plutonium est important, il sert à déterminer les critères selon lesquels l'AIEA considère un détournement proliférant.

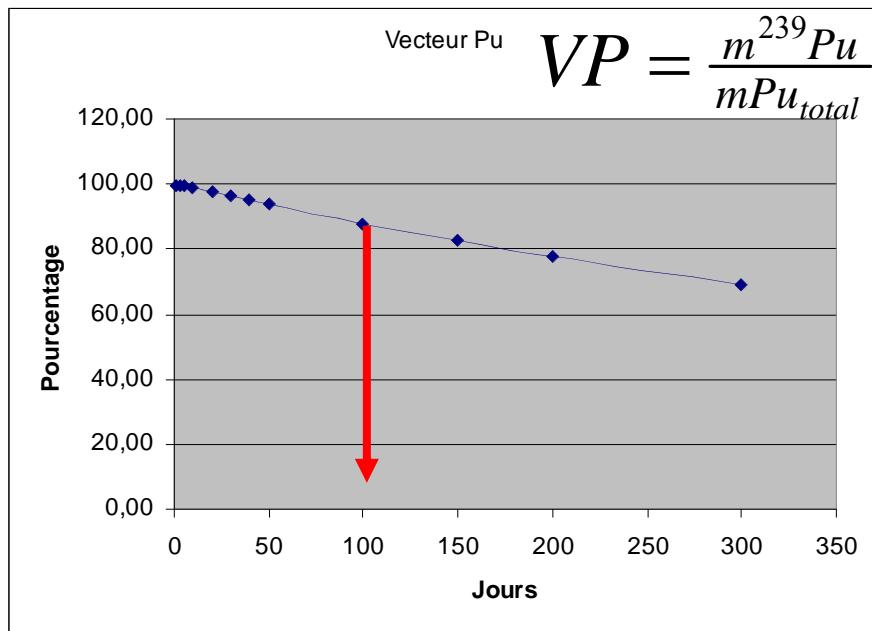


Fig. 3.4.4 : Vecteur du plutonium en fonction de temps où le combustible réside dans le réacteur.

Matériau nucléaire	Quantité Significative	Délai de détection
^{235}U d'uranium peu enrichi (<20%, LEU)	75 kg d' ^{235}U	1 an
Pu (^{238}Pu <80%)	8 kg	3 mois
^{233}U	8 kg	3 mois

Tableau 3.4.1 : Définition d'une quantité significative et du délai pertinent pour un détournement d'après le glossaire de l'AIEA [69].

Pour l'AIEA, une quantité significative (Significant Quantity, SQ) est la quantité requise d'un matériau nucléaire pour fabriquer une bombe. Une SQ dépend du type de matériau (cf. le tableau 3.4.1) et bien sûr de son conditionnement. Le délai pertinent de détection est le délai considéré comme suffisant pour fabriquer une bombe après un détournement d'une SQ.

Quant au vecteur Plutonium, l'AIEA ne précise pas le type de vecteur, on considère alors que tout vecteur plutonium pourrait être détourné et servir à fabriquer une bombe. Dans les faits, on classe en général le plutonium détourné en fonction de sa « qualité »

- $^{239}\text{Pu} > 93\%$: le Plutonium est dit de qualité militaire ("weapon grade")
- $80\% < ^{239}\text{Pu} < 93\%$: le Plutonium est dit de qualité "combustible" ("fuel grade")
- $^{239}\text{Pu} < 80\%$: le Plutonium est dit de qualité "réacteur" ("reactor grade").

3.4.2.1. Présentation du scénario grossier choisi

Notre réacteur CANDU fictif contient 400 canaux de combustible et 2 canaux sont rechargés par jour, comme exposé ci-dessus.

L'idée est que si l'on augmente la fréquence de rechargement, la proportion de ^{239}Pu dans le vecteur isotopique du Pu augmente. Notre première approche, définie en collaboration avec A. Nuttin du LPSC, était donc de simuler un canal rechargé à 200 jours, un autre à 100 jours et un autre à 300 jours dans lesquels le rechargement à 100 jours est le rechargement proliférant. Recharger le même nombre de canaux de période de rechargement à 100 jours et à 300 jours permet de masquer le détournement du plutonium. Mais nous devons en outre conserver le nombre de rechargements le long du cycle de 400 jours (800 rechargements). Nous avons en outre adopté l'hypothèse que les canaux rechargés à 100 jours n'étaient pas les mêmes que ceux rechargés à 300 jours. En respectant ces conditions, nous considérerons donc comme scénario proliférant un cœur de réacteur CANDU dont le quart des canaux est rechargé tous les 100 jours et les trois quarts restants sont tous les 300 jours.

On a vérifié sur la courbe du k_{∞} que les réactivités à 100 jours et 300 jours se compensaient afin que les conditions neutroniques ne soient pas trop irréalistes, même si nous avons volontairement commencé par étudier un premier scénario grossier. Comme énoncé plus haut, il s'agit ici de calculer un premier ordre de grandeur, qui déterminera si envisager des scénarios plus fins est nécessaire par la suite. Nous verrons la valeur du k_{∞} associé à ce scénario dans les paragraphes qui suivent.

Avec le rechargement de période 100 jours, la qualité du plutonium est d'environ 86% (cf fig. 3.4.4), donc légèrement inférieur à 93%, et donc de qualité combustible mais pas de qualité militaire. Nous avons donc réalisé dans un second temps de nouvelles simulations pour un rechargement proliférant de période 50 jours et la qualité du plutonium dans ce cas

est d'environ 97%. La période de rechargement des canaux qui serviront à masquer le détournement sera alors de 350 jours. Avec les mêmes hypothèses que précédemment, pour conserver le nombre total de rechargements nous considérerons que le cœur est recharge pour un huitième tous les 50 jours et le reste du cœur est recharge tous les 350 jours.

Dans la suite nous allons comparer le rechargement normal de 200 jours avec le rechargement proliférant de 100 jours et 300 jours. Un scénario grossier est effectué sur l'ensemble des 400 canaux pour avoir le flux d'antineutrinos émis correspondant aux cas normal et proliférant.

3.4.2.2. Rechargement à 100 jours et 300 jours, 50 jours et 350 jours

3.4.2.2.1. Résultats du rechargement à 100 jours et 300 jours

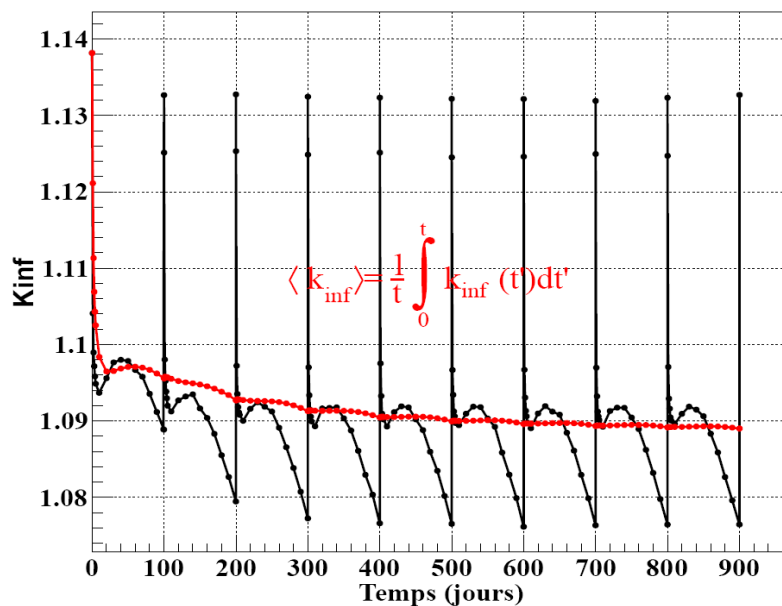


Fig. 3.4.5 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 100 jours.

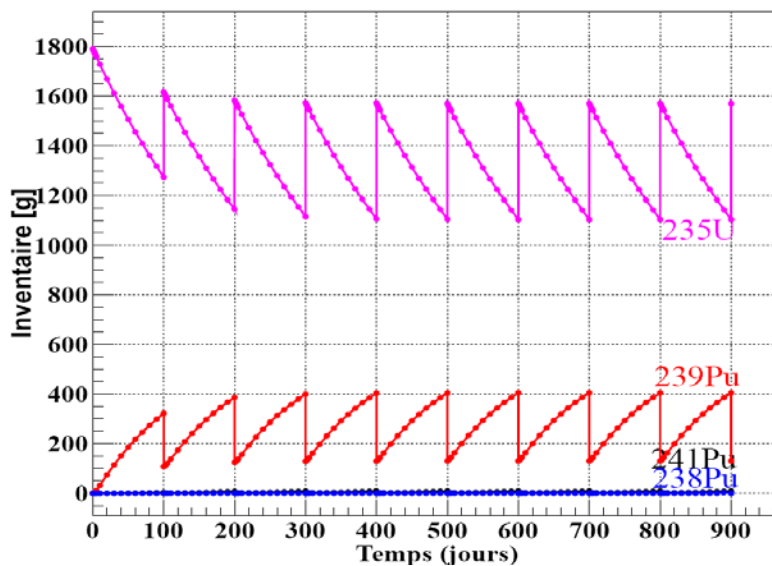


Fig. 3.4.6 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 100 jours.

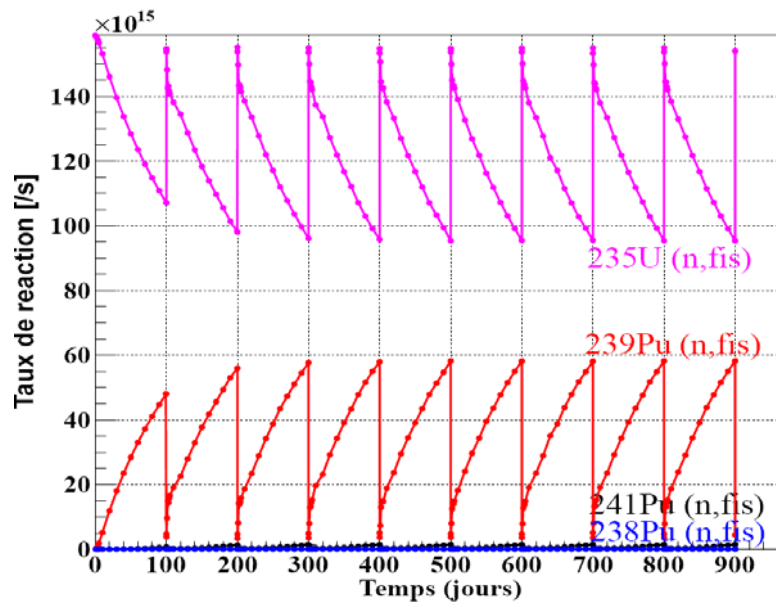


Fig. 3.4.7 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 100 jours.

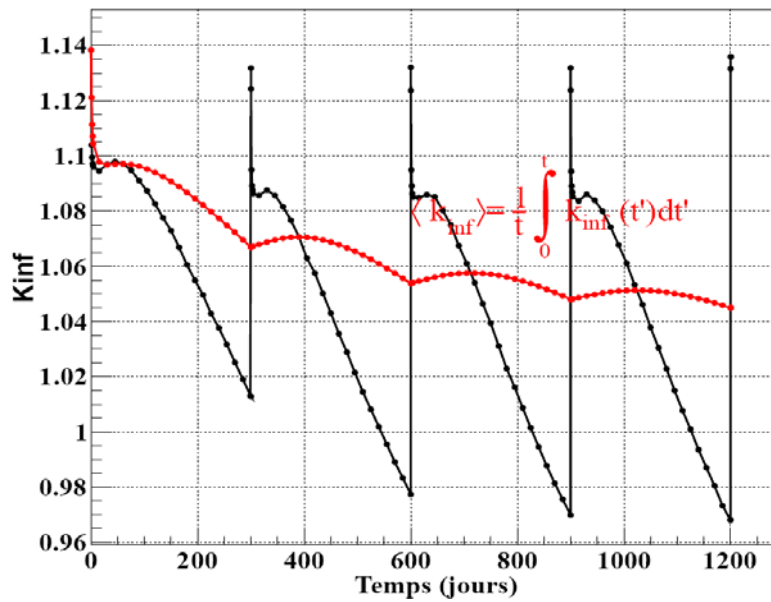


Fig. 3.4.8 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 300 jours.

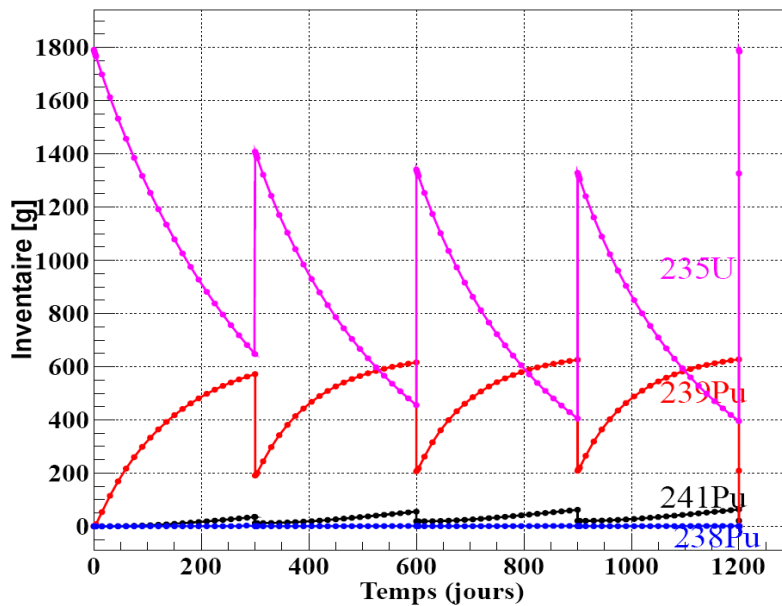


Fig. 3.4.9 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 300 jours.

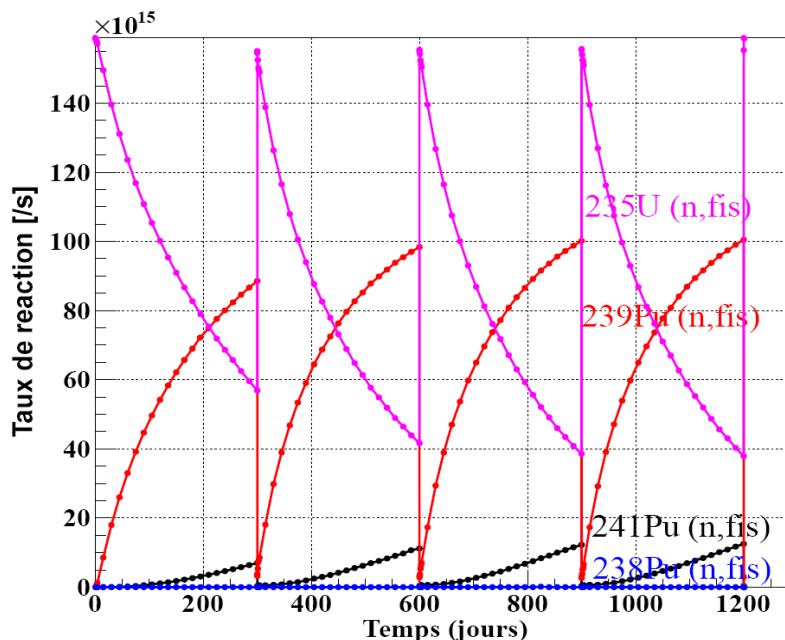


Fig. 3.4.10 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 300 jours.

On peut voir sur les figures de l'inventaire pour le rechargement à 100 jours et 300 jours que la quantité de ^{241}Pu créée au bout de 100 jours est plus faible comparée au cas d'un rechargement plus long.

Grace aux figures 3.4.5 et 3.4.8 donnant l'évolution du facteur de multiplication infini on peut calculer quel serait le facteur de multiplication moyen d'un cœur rechargé pour un quart à 100 jours et pour trois quarts à 300 jours, on trouve environ 1.05, ce qui nous laisse moins de marge de réactivité que la valeur obtenue dans le cas des canaux rechargés tous les 200 jours, 1.073. Pour information complémentaire, l'ordre de grandeur de l'erreur que l'on fait provenant des bases de données nucléaires est de 500 pcm.

Pour que le scénario étudié soit pertinent en termes de neutronique, il faut que le coefficient de multiplication infini soit supérieur à la valeur 1.04 d'après [64], afin de

conserver une marge de réactivité de 1000 pcm pour les instruments de contrôle en plus des 3000pcm de fuites. Ci-dessus nous avons considéré 2000 pcm d'absorption par le bore négligé ou d'autres éléments absorbants, ce qui nous amènerait plutôt à un facteur multiplicateur seuil de 1.05. Nous considérerons que les absorptions pourront être réduites à 1000 pcm en nous référant à [82].

3.4.2.2.2. Résultats du rechargement à 50 jours et 350 jours

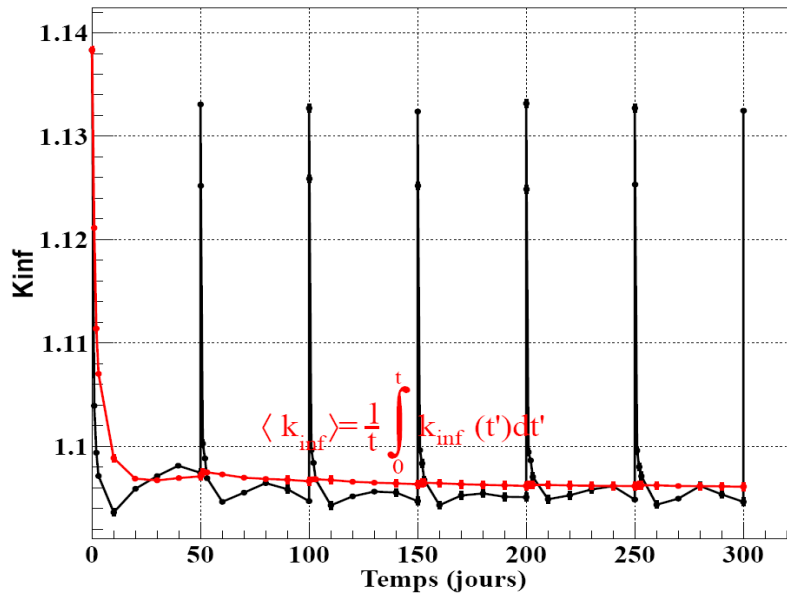


Fig. 3.4.11 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 50 jours.

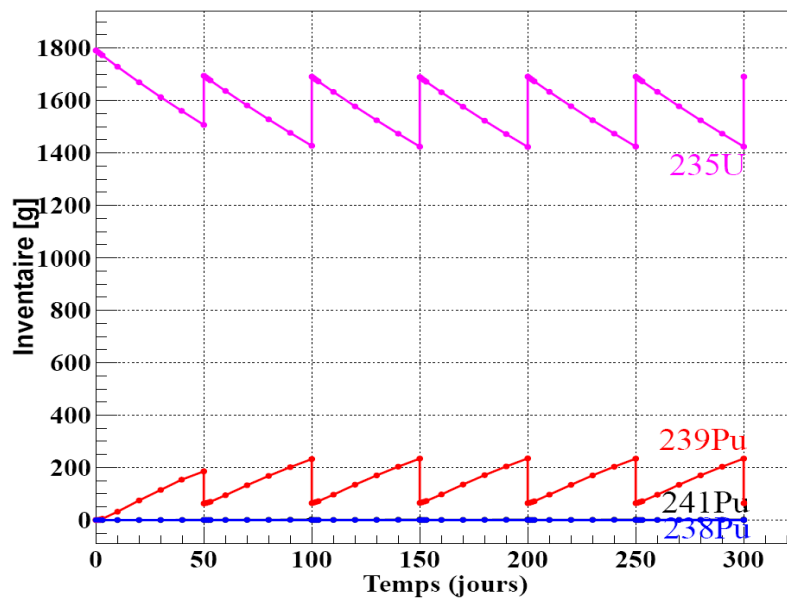


Fig. 3.4.12 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 50 jours.

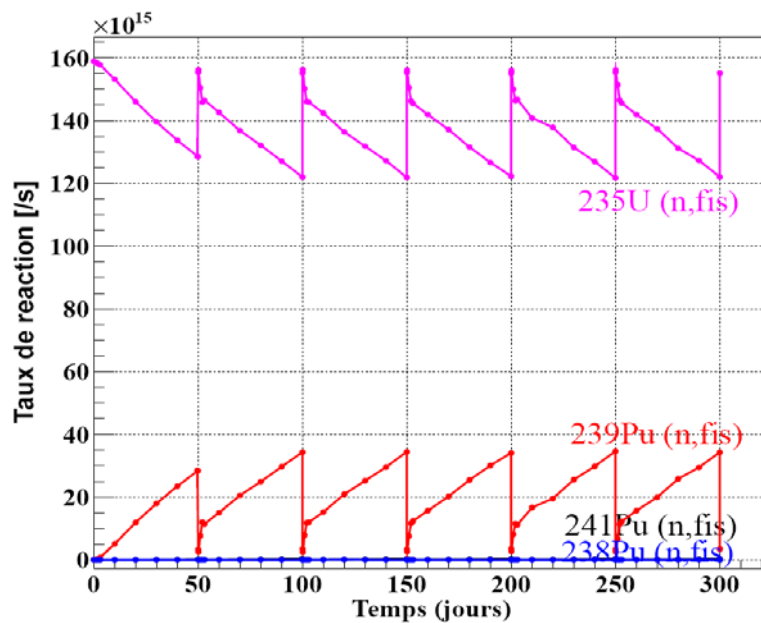


Fig. 3.4.13 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 50 jours.

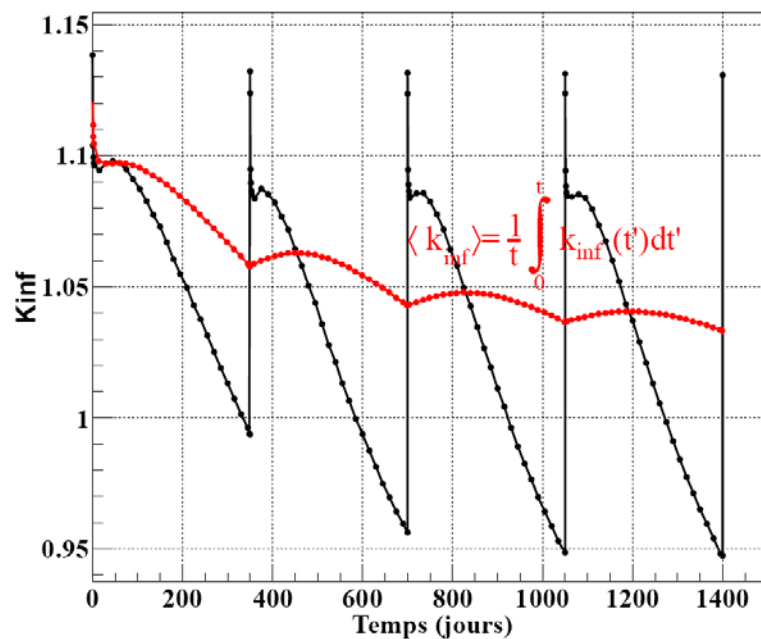


Fig. 3.4.14 : Facteur de multiplication d'un canal de combustible avec le rechargement à 350 jours.

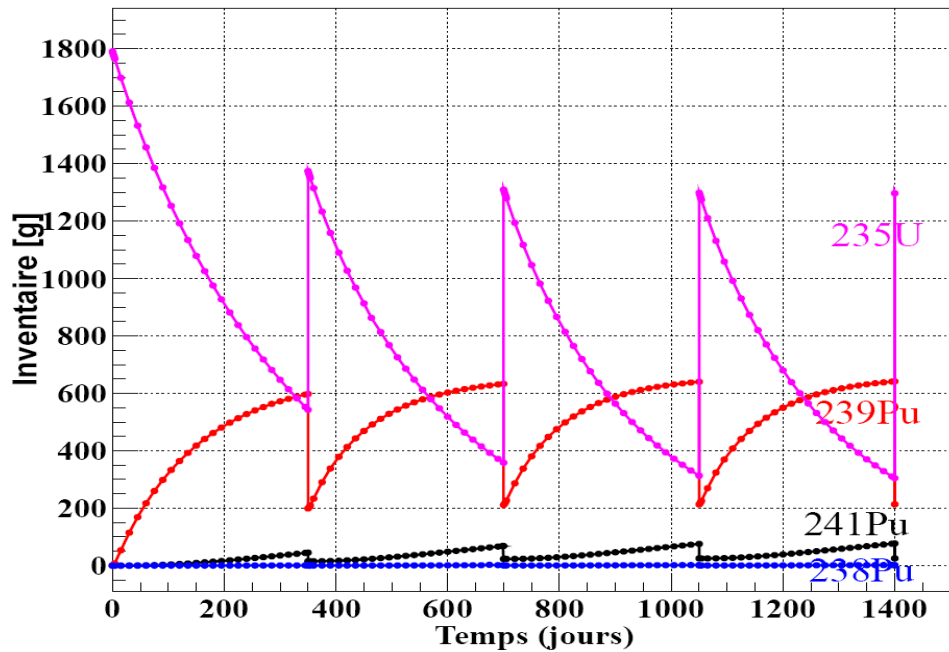


Fig. 3.4.15 : Inventaire d'un canal de combustible avec le rechargement à 350 jours.

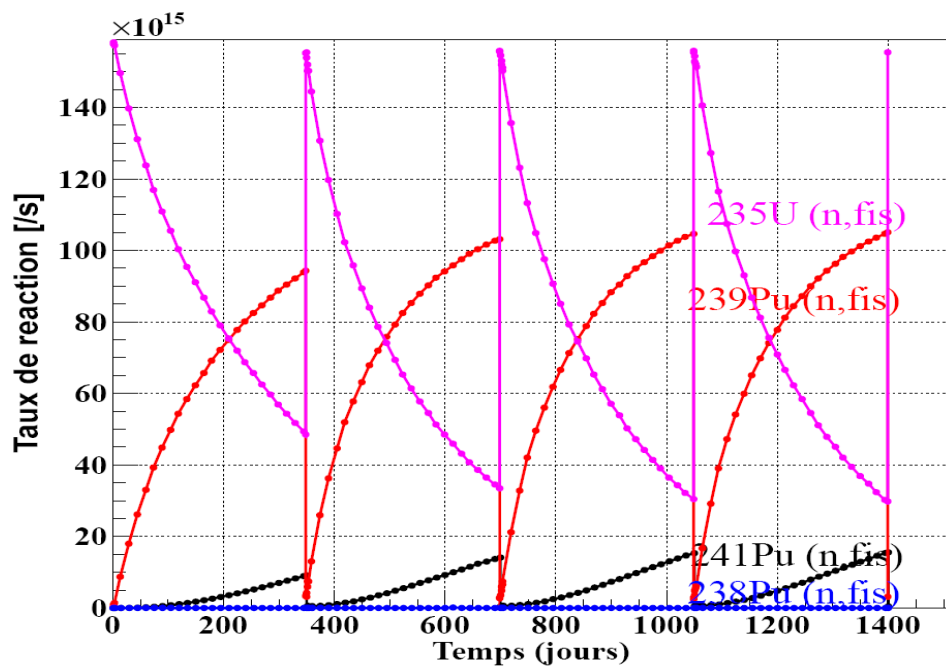


Fig. 3.4.16 : Taux de réaction d'un canal de combustible avec le rechargement à 350 jours.

Ce scénario montre l'importance du temps de rechargement pour la prolifération qui nous donne un vecteur plutonium d'environ 93% à 50 jours, ce qui correspond presque à une qualité militaire. Pour détourner une SQ, la simulation indique qu'il faut détourner 107 canaux.

Le facteur de multiplication infini moyen obtenu pour un cœur qui serait rechargé pour un huitième tous les 50 jours et pour le reste tous les 350 jours est d'environ 1.0324, ce qui nous semble trop faible. Un compromis est d'envisager un scénario mixte : le déséquilibre en réactivité est suffisamment faible pour partir d'un rechargement nominal tous les 200 jours et à partir d'un instant t détourner des canaux à 50 jours le temps de réunir une SQ (107 jours).

Si on perturbe le comportement légitime pour le retrait de 223 canaux, on obtiendra au bout de 223 jours un k_{∞} de 1.0626 ($107/400 \cdot 1.0324 + 293/400 \cdot 1.0736$).

Les tableaux 3.4.2 à 3.4.6 présentent les bilans des inventaires avant et après les rechargements principaux pour les différents canaux simulés.

Isotope	1 ^{er} rechargement		2 ^{eme} rechargement		Equilibre	
	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)
²³⁵ U	1276.49	1617.07	1143.68	1584.01	1103.55	1571.01
²³⁸ U	249612	249943	249440	249902	249382	249885
²³⁹ Pu	320.957	107.68	386.109	124.326	404.322	130.408
²⁴¹ Pu	3.66716	1.25912	7.52522	2.07162	9.08866	2.45735

Tableau 3.4.2 : Bilan de masse de l'²³⁵U, de l'²³⁸U, du ²³⁹Pu et du ²⁴¹Pu dans le canal au 1^{er} rechargement, au 2^{eme} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 100 jours.

Isotope	1 ^{er} rechargement		2 ^{eme} rechargement		Equilibre	
	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)
²³⁵ U	914.868	1495.16	727.378	1431.04	674.669	1416.97
²³⁸ U	249108	249772	248749	249650	248623	249618
²³⁹ Pu	485.537	162.901	548.625	185.037	564.315	188.815
²⁴¹ Pu	16.7183	5.74091	28.9628	9.89208	33.4342	11.011

Tableau 3.4.3 : Bilan de masse de l'²³⁵U, de l'²³⁸U, du ²³⁹Pu et du ²⁴¹Pu dans le canal au 1^{er} rechargement, au 2^{eme} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 200 jours.

Isotope	1 ^{er} rechargement		2 ^{eme} rechargement		Equilibre	
	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)
²³⁵ U	647.273	1408.34	455.536	1340.86	395.598	1326.73
²³⁸ U	248576	249598	248021	249402	247771	249349
²³⁹ Pu	572.069	190.747	616.301	206.759	627.548	208.855
²⁴¹ Pu	35.2231	11.7976	55.1942	18.8535	63.503	20.7743

Tableau 3.4.4 : Bilan de masse de l'²³⁵U, de l'²³⁸U, du ²³⁹Pu et du ²⁴¹Pu dans le canal au 1^{er} rechargement, au 2^{eme} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 300 jours.

Isotope	1 ^{er} rechargement		2 ^{eme} rechargement		Equilibre	
	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)
²³⁵ U	542.891	1374.05	358.342	1309.4	304.473	1296.9
²³⁸ U	248303	249508	247642	249276	247349	249215
²³⁹ Pu	597.912	198.97	633.186	211.444	641.597	213.483
²⁴¹ Pu	45.1386	15.0674	68.2535	23.2301	77.1276	25.2127

Tableau 3.4.5 : Bilan de masse de l'²³⁵U, de l'²³⁸U, du ²³⁹Pu et du ²⁴¹Pu dans le canal au 1^{er} rechargement, au 2^{eme} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 350 jours.

Isotope	1 ^{er} rechargement		2 ^{eme} rechargement		Equilibre	
	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)	Avant (g)	Après (g)
²³⁵ U	1507.18	1694.5	1427.16	1690.79	1424.06	1691.27
²³⁸ U	249859	250026	249774	250022	249770	250023
²³⁹ Pu	185.376	62.8876	232.568	64.6071	234.399	64.0441
²⁴¹ Pu	0.606933	0.211482	1.62449	0.236951	1.68389	0.235666

Tableau 3.4.6 : Bilan de masse de l'²³⁵U, de l'²³⁸U, du ²³⁹Pu et du ²⁴¹Pu dans le canal au 1^{er} rechargement, au 2^{eme} rechargement et à l'équilibre pour le scénario de rechargement de 50 jours.

3.5. Calcul du flux d'antineutrinos

Avant de présenter les résultats obtenus, je vais introduire les deux méthodes de calcul possibles des antineutrinos émis grâce aux données issues des simulations réalisées avec le code MURE. Ces deux méthodes ont été introduites dans le chapitre 1 dans le paragraphe 2.5.6.

La première méthode consiste à calculer le flux d'antineutrinos à partir des taux de fissions des quatre noyaux principaux contributeurs : ²³⁵U, ²³⁸U, ²³⁹Pu, et ²⁴¹Pu en les pondérant par leur spectre associée issu de la méthode de conversion des données de Schreckenbach [46], [48].

La seconde méthode est la méthode de sommation, qui somme toutes les contributions des décroissances bêta des produits de fission dont les concentrations en fonction du temps sont calculées avec MURE [50].

Nous détaillons ci-dessous le principe de ces calculs. Dans la réalité, le β -spectre total émis est la somme des contributions de quatre noyaux principaux :

$$S_{tot}(E) = \sum_{k=\supset{235}\text{U}, \supset{238}\text{U}, \supset{239}\text{Pu}, \supset{241}\text{Pu}} \alpha_k S_k(E) \quad 3.9$$

où α_k presente le nombre de fission du k^{eme} isotope au temps donné, $S_k(E)$ est le spectre β -normalisé à une fission et E est l'énergie cinétique des électrons émis.

Dans cette équation, le terme $S_k(E)$ est défini comme la contribution de tous les produits de fission.

$$S_k(E) = \sum_{fp=1}^{N_{fp}} A_{fp}(t) S_{fp}(E) \quad 3.10$$

où $A_{fp}(t)$ est l'activité du fp^{eme} produit de fission au temps t et normalisé à une fission de l'isotope 'k'. Le spectre $S_{fp}(E)$ de chaque produit de fission est alors la somme du nombre de branches β - reliant le noyau père à l'état fondamental du noyau fils ou dans certain cas l'état isométrique du noyau fils.

$$S_{fp}(E) = \sum_{b=1}^{N_b} BR_{fp}^b S_{fp}^b(Z_{fp}, A_{fp}, E_{0fp}^b, E) \quad 3.11$$

BR_{fp}^b et E_{0fp}^b sont respectivement le rapport de branchement (branching-ratio) et l'énergie de end-point de la $b^{\text{ème}}$ branche du $fp^{\text{ème}}$ produit de fission. Z_{fp} et A_{fp} sont la charge et le nombre de masse du noyau père. La somme des rapports de branchement est normalisée au rapport de branchement de la décroissance β^- du noyau père (1 si le père est un pur émetteur β^- , <1 sinon).

Les équations (3.9) à (3.11) sont valides pour le spectre des électrons ou des antineutrinos. L'expression du spectre des électrons pour la $b^{\text{ème}}$ branche est donnée par le produit des termes suivants :

$$S_{fp}^b = \underbrace{S_{fp}^b}_{\text{Norm}} \times \underbrace{F(Z_{fp}, A_{fp}, E)}_{\text{Fermi fonction}} \times \underbrace{pE(E - E_{0fp}^b)^2}_{\text{Phase space}} \times \underbrace{C_{fp}^b(E)}_{\text{Shape factor}} \times \underbrace{(1 + \delta_{fp}^b(Z_{fp}, A_{fp}, E))}_{\text{Correction}} \quad 3.12$$

Pour obtenir l'expression correspondante du spectre d'antineutrinos, il suffit de remplacer E l'énergie de l'électron dans la formule (3.12) par l'énergie de l'antineutrino :

$$E_\nu = E_{0fp}^b - E \quad 3.13$$

E conformément à la conservation de l'énergie totale de l'antineutrino et de l'électron pour chaque décroissance bêta pour chaque isotope.

Pour plus de détail, voir l'article de Th. A. Mueller et al.[46] et P. Huber et al. [48]

3.6. Résultats du scénario proliférant étudié : comparaison normale/proliférante

Sur la fig. 3.6.1 sont présentés les flux des antineutrinos émis par les canaux de CANDU simulés pour des antineutrinos d'énergie supérieure à 1.8 MeV (voir 1.2.4). Les antineutrinos émis sont directement calculés avec MURE, via la méthode de sommation des contributions des produits de fission. Les bases de données de décroissance sélectionnées sont choisies selon les priorités présentées dans la référence [50]. Les mesures réalisées par la méthode TAGS de [40] sont incluses. .

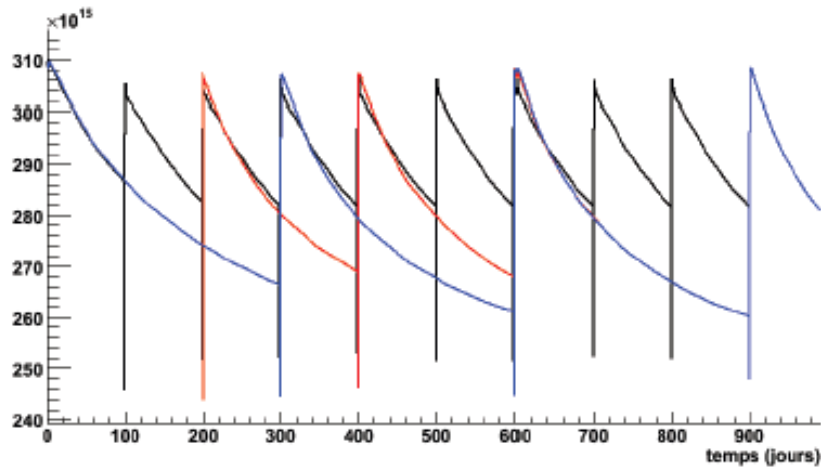


Fig. 3.6.1 : Flux des antineutrinos émis pour les rechargements à 100 (courbe noire), 200 (courbe rouge) et 300 jours (courbe bleue).

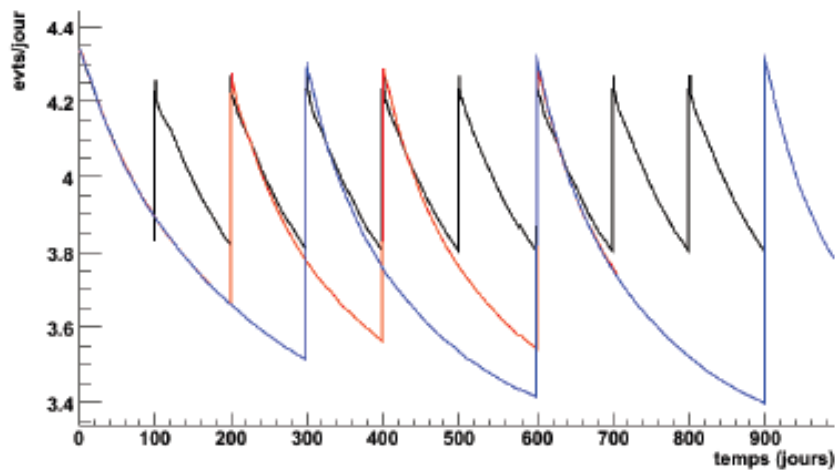


Fig. 3.6.2 : Flux des antineutrinos détecté dans un détecteur de 'jeu' placé à 25m du canal simulé pour les rechargements à 100 (courbe noire), 200 (courbe rouge) et 300 jours (courbe bleue).

Sur la figure 3.6.1, on peut voir de grandes chutes du flux à chaque rechargement. Ces chutes peuvent être expliquées par le fait qu'à chaque rechargement 2 tiers du combustible est remplacés par du combustible neuf. Dans le combustible retiré, des noyaux de périodes intermédiaires (typiquement de la minute à 1 jour) peuvent être de grands contributeurs au flux d'antineutrinos. Dans ces noyaux on a notamment le ^{239}U et le ^{239}Np qui ont un endpoint inférieur à 1.8MeV, mais aussi des produits de fission dont certains ont un endpoint supérieur à 1.8MeV qui atteignent des concentrations d'équilibre au bout de la période considérée, et dont les concentrations sont grandement diminuées au moment du rechargement. Ces noyaux retrouvent cependant leurs conditions d'équilibre assez rapidement, ce qui provoque la remontée très rapide du flux. Cet effet disparaît fortement sur la figure 3.6.2 sur laquelle le flux d'antineutrinos qui serait détecté par jour (par canal) par un détecteur de 'jeu' de 1.1t de scintillateur liquide et 50% d'efficacité de détection, placé à 25m des canaux est présenté.

Le réacteur de nos scénarios contient 400 canaux avec un temps de rechargement du combustible d'environ 200 jours dans le cas normal. Pour obtenir un flux plat d'antineutrinos correspondant à un réacteur à l'équilibre, on interpole les flux présentés dans la fig. 3.6.2 et

on décale les courbes de 1 jour pendant 400 jours afin de simuler le rechargement journalier. La proportion de 2 canaux rechargés par jour pour les canaux de période 200 jours est respectée. Dans le cas proliférant on somme 100 canaux recharges à 100j et 300 canaux recharges à 300 jours afin de conserver le nombre total de rechargements (800 sur 400 jours).

Les flux résultants sont présentés sur la figure 3.6.3. La différence observée entre les 2 flux est de 1.25 %. Nous savons d'ores et déjà que cette différence est probablement incluse dans les barres d'erreur de la détection (en faisant l'hypothèse provisoire que l'on néglige les erreurs associées à notre calcul). En effet, un détecteur du type de Nucifer, peut au minimum espérer prendre des mesures avec une erreur systématique de 1%, sans compter l'erreur statistique qui n'est pas réductible à 0. En faisant des comparaisons relatives dans le temps, on élimine la plupart des erreurs systématiques de détection à condition que le détecteur soit très stable.

Dans le cas du rechargement à 50 jours et à 350 jours, dans des proportions de un huitième des canaux contre 7 huitièmes respectivement pour conserver les 800 rechargements, la différence obtenue est un peu plus importante. On trouve 2.8% d'écart entre le cas normal et le cas proliférant.

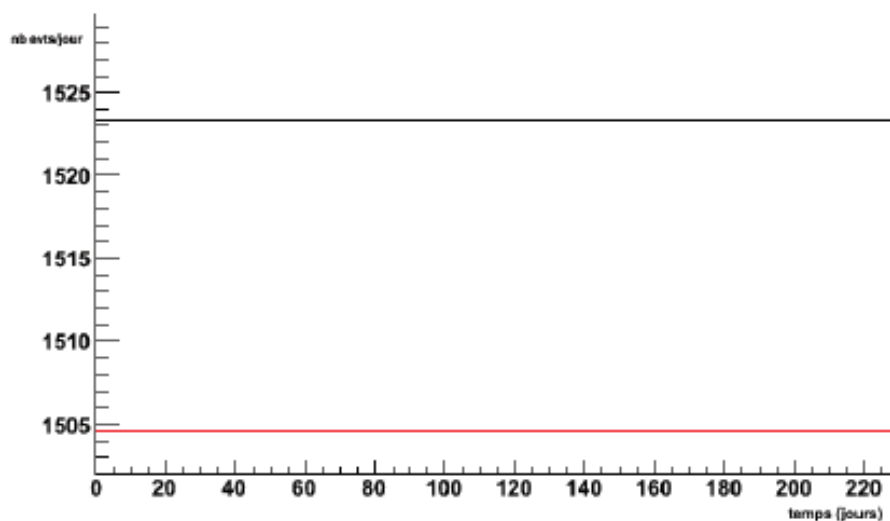


Fig. 3.6.3 : Flux d'antineutrinos détectés à l'équilibre pour 400 canaux dans le cas d'un détecteur de 'jeu' à 25m pour le cas normal (noir) et le cas proliférant 100j/300j (rouge).

Compte tenu de l'ordre de grandeur des écarts trouvés, il semble légitime de s'interroger sur les erreurs qui sont associées aux simulations de réacteur.

3.7. Discussion sur les erreurs

3.7.1. Erreurs sur les taux de fission calculés

Un travail complet sur l'influence des différents paramètres entrant dans la simulation d'un cœur de réacteur de type REP a été réalisé par A. Onillon dans le cadre de sa thèse dans l'expérience Double Chooz [70].

Il est très difficile de reproduire une telle étude pour chaque concept de réacteur étudié. Nous allons donc tenter d'utiliser les résultats de cette étude pour estimer l'ordre de grandeur des erreurs associées aux taux de fission calculés dans l'hypothèse d'une simulation détaillée de réacteur CANDU. Le point commun entre les deux concepts de réacteurs est d'être deux réacteurs à neutrons thermiques tous les deux. Les principaux noyaux contribuant à la fission dans les 2 réacteurs sont donc dans les 2 cas ^{235}U , le ^{239}Pu , ^{238}U et le ^{241}Pu . La neutronique sera donc sensiblement la même, ainsi les erreurs déterminées dans le cas d'un REP devraient bien se transposer au cas d'un CANDU.

Les erreurs considérées ici ont été calculées par des études systématiques à partir d'une simulation d'assemblage de REP, en variant chaque paramètre d'entrée pertinent un par un sur une large gamme de valeurs. Les paramètres étudiés sont les suivants :

- puissance thermique,
- concentration en Bore de l'eau (que nous n'avons pas ici),
- températures et densités de l'eau légère (ici, lourde. Pour être complet, il faudrait tenir compte de l'impureté en eau légère, qui a une influence sur la neutronique) et du combustible,
- erreur statistique de la simulation,
- choix de base de données,
- choix de la méthode de calcul (déterministe contre Monte-Carlo, déterminée en réalisant un benchmark avec DRAGON [71] et en comparant à des résultats de simulation d'assemblage EDF),
- burnup initial des assemblages (donc erreur sur l'inventaire initial),
- les énergies libérées par fission utilisées,
- suivi des barres de contrôle (que nous négligeons).

Toutes les erreurs calculées en faisant varier ces paramètres sont ensuite sommées quadratiquement en première approximation.

Notons que nous nous sommes attachés à n'étudier que des résultats qui comparent un cas proliférant à un cas de référence afin d'éliminer un maximum d'erreurs systématiques dans la comparaison. Avec cette hypothèse, nous pouvons considérer par exemple que les erreurs sur les choix de température et densité de l'eau et du combustible s'éliminent entre les deux scénarios (sauf s'ils impliquent un changement de régime de puissance drastique du réacteur qui donnerait des conditions thermodynamiques différentes). De même les erreurs dues au choix de base de données de sections efficaces de réaction, la méthode numérique, les erreurs provenant du modèle géométrique et les erreurs sur les énergies libérées par fission utilisées s'élimineraient dans la comparaison. Nous obtenons dans ce cas par somme

quadratique des erreurs restantes (puissance thermique dans l'hypothèse où la mesure a une erreur de 0.4%, erreur statistique, burnup initial, barres de contrôle) les erreurs présentées dans le tableau suivant :

Isotope	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu
Erreur	2.5%	5.5%	4.5%	7%

Tableau 3.7.1 : Erreurs sur les taux de fission déduites d'une étude menée pour un REP, en ne sommant quadratiquement que les erreurs supposées décorrélées entre les 2 scénarios considérés.

S. Cormon a réalisé des études statistiques pour tester la détectabilité des scénarios proliférants [49]. Dans un premier temps, S. Cormon a repris les taux de réactions calculés par MURE, et recherché les distorsions maximales compatibles avec les barres d'erreurs indiquées dans le tableau 3.7.1. Pour cela, elle a perturbé en premier lieu le taux de fissions de l' ^{235}U de son erreur maximale (2.5%) et vérifié que cette perturbation était compensable par des perturbations des taux de fissions des autres noyaux dans leur barre d'erreur associée. Elle a ensuite évalué la variation du flux d'antineutrinos correspondant aux variations extrêmes des taux de fission. L'écart maximal induit sur le flux d'antineutrinos est de 0.8%. Elle a ensuite réalisé des tests de chi-2 et de Kolmogorov –Smirnov, à la fois sur les flux, à la fois sur les spectres en énergie correspondant aux différents scénarios.

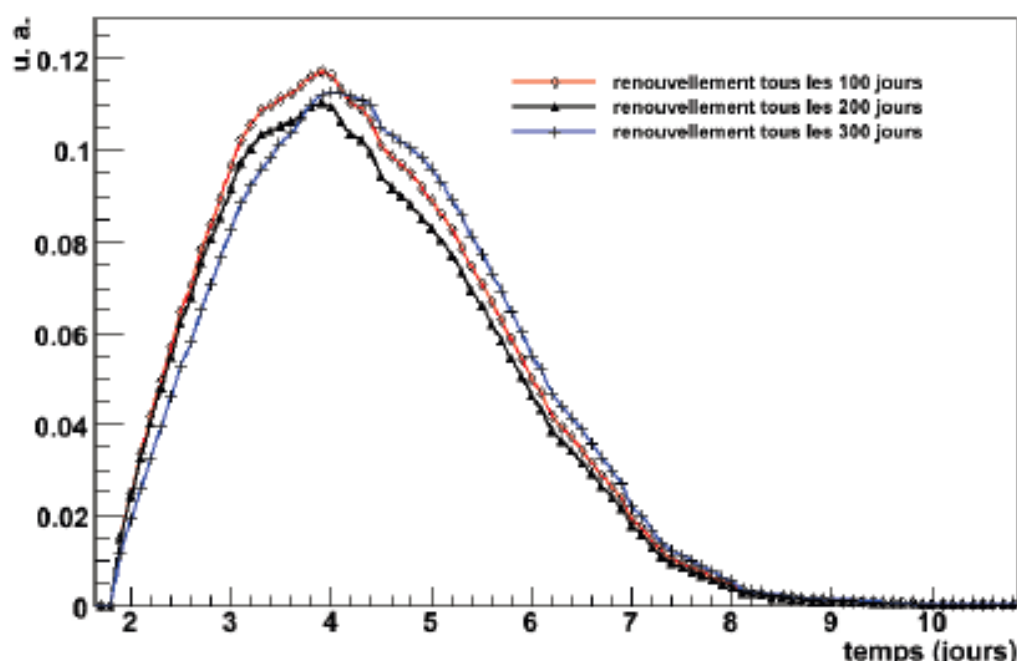


Fig. 3.7.1 : Comparaison des spectres d'antineutrinos à 350 jours pour les différents types de rechargement.

En effet, comme on peut le voir sur la figure 3.7.1 [49] les spectres en énergie pris à un instant donné pour les différents canaux considérés sont différents. La prise en compte de cette différence pourrait apporter un élément supplémentaire permettant la détection du détournement.

3.7.2. Erreurs sur la décroissance β^- des produits de fission

D'après la réf. [46], les erreurs sur les spectres en énergie calculés par la méthode de sommation des contributions des produits de fission sont de l'ordre de 10% à 1σ pour chaque bin. Ces erreurs ont été estimées en prenant en compte les erreurs données dans les bases de données sur les endpoints des branches beta de décroissance, les périodes des produits de fission, les rapports de branchement. Malheureusement, elles n'ont pas été évaluées de façon indépendante des spectres bêta mesurés par l'équipe de Schreckenbach dans les années 80 à l'ILL. En effet, les barres d'erreur associées aux données manquantes sur les propriétés de décroissance des produits de fission ont été estimées en utilisant la différence entre les spectres calculés par la méthode de sommation et les mesures de Schreckenbach et al. Il se peut que la barre d'erreur de 10% donnée soit surestimée pour certains bins en énergie. Il serait donc nécessaire de compléter cette étude des erreurs indépendamment des mesures réalisées à l'ILL.

Compte-tenu de cette barre d'erreur sur les bins des spectres en énergie associés aux scénarios considérés, S. Cormon a réalisé des tests statistiques. Le scénario de rechargement des canaux à 100j et 300j ne serait sans doute pas détecté de façon fiable par un détecteur de type Nucifer placé à 25m du réacteur. En effet, la compatibilité entre le spectre en énergie des antineutrinos à l'équilibre pour le scénario proliférant 100 jours / 300 jours avec celui du comportement légitime est de 99.98%. Par conséquent, nous ne pourrions pas discriminer les deux comportements grâce à la différence d'allure du spectre à l'équilibre.

Cependant S. Cormon conclut que le scénario de rechargement de canaux à 50 jours et 350 jours appliqué pendant 223 jours, le temps de détourner une SQ de plutonium, combiné à un rechargement normal pendant les 177 jours restants, serait détecté par un détecteur de type Nucifer placé à 25m du réacteur. Je vous renvoie à son manuscrit de thèse pour y trouver les détails de ces études [49].

3.8. Conclusion et perspectives

Au vu des études réalisées dans ce chapitre avec des simulations simples de canaux de réacteurs CANDU, il serait difficile de tirer une conclusion générale. En effet, simuler un réacteur CANDU à l'équilibre de façon réaliste est une tâche délicate en raison du rechargement en ligne journalier de ce réacteur. Nous nous sommes donc contentés dans un premier temps de faire ici des estimations, qui n'avaient jamais été faites auparavant dans le contexte des antineutrinos émis par les réacteurs. Ces estimations nous donnent des écarts entre scénarios légitime et proliférant faibles, avec une marge de réactivité faible également. Cependant avec un écart de 2.8% entre scénario légitime et proliférant, il est possible de détecter un détournement, en 107 jours environ.

Il serait donc nécessaire d'affiner cette étude. La méthode la plus simple pour simuler par ex. un cœur complet avec différents modes de rechargement des canaux simultanés, serait d'utiliser un code déterministe, comme par ex. DRAGON et DONJON dans les références [64], [68], la méthode Monte-Carlo étant quasi impossible à utiliser pour ce genre de gestion de cœur.

Bien sûr la meilleure assurance que les ordres de grandeurs donnés ici sont corrects, serait de disposer d'une mesure des antineutrinos émis par un réacteur CANDU. Ce n'est peut-être pas un rêve lointain, puisque l'équipe du Lawrence Livermore National Lab. installe actuellement un détecteur auprès d'un réacteur CANDU 6 au Canada, à Point Lepreau [72]. Le détecteur est constitué d'une cible de 4m^3 de scintillateur liquide dopé au Gd, entouré d'un détecteur veto à muons cosmiques. Il sera placé à 75m du cœur du réacteur. Il s'agit d'une opportunité exceptionnelle puisque le détecteur devrait pouvoir mesurer le démarrage du réacteur à partir d'un cœur neuf. Les données devraient alors suivre la mise à l'équilibre du cœur.

Une étape complémentaire vers l'élaboration d'un outil de lutte contre la prolifération qui serait constitué d'un détecteur couplé à un code de simulation de réacteur, serait de simuler précisément l'une ou plusieurs des expériences de non-prolifération envisagées afin de confronter les prédictions aux données mesurées et d'évaluer la prédictibilité des codes. L'expérience Double Chooz dans sa seconde phase, avec le spectre très précis que le détecteur proche va mesurer, permettra de réaliser une telle comparaison avec un détecteur d'une qualité exceptionnelle, bien supérieure aux détecteurs conçus pour la non-prolifération. Les spectres en énergie et flux mesurés par le détecteur proche seront alors comparés aux spectres et flux prédits par la simulation (réalisée avec le code MURE) à partir des données des historiques des deux cœurs de la centrale de Chooz. Nous pourrions alors déduire de cette comparaison la sensibilité maximale que la sonde antineutrinos pourra atteindre sur la composition du combustible ou encore la mesure de la puissance thermique. Ce sera également une opportunité unique de valider une simulation des antineutrinos émis précise et réaliste réalisée avec le code MURE.

Chapitre 4 :

Simulation du réacteur Osiris pour
l'expérience Nucifer

Dans le cadre du projet NUCIFER de détecteur d'antineutrinos dédié à la non-prolifération, un détecteur d'antineutrinos est actuellement installé à l'intérieur du bâtiment réacteur OSIRIS [73], [74], [75] dans la casemate « OPERA » au niveau -11m, éloigné d'environ 7m du centre du cœur. Le détecteur contient un volume important de 0,85 m³ de scintillateur liquide dopé avec du Gd. On attend environ 650 antineutrinos détectés par jour dans le détecteur Nucifer. Afin de comparer les mesures à l'émission d'antineutrinos attendue pour le réacteur OSIRIS, j'ai développé la simulation du cœur de ce réacteur de recherche. En outre, le bruit de fond provenant du réacteur est très important à une distance de 7m. Afin de caractériser ce bruit de fond (essentiellement gammas), j'ai complété la simulation du cœur du réacteur pour transporter les neutrons et les photons émis jusqu'au site expérimental. Ce chapitre est consacré à la présentation de ces travaux.

4.1. Expérience Nucifer

Le domaine des neutrinos livre maintenant les premières applications à la surveillance des réacteurs nucléaires. Les antineutrinos sont émis par les désintégrations β^- des produits de fission et la mesure des flux d'antineutrinos produits en temps réel est liée directement aux processus de fissions qui se produisent dans le cœur du réacteur. En raison de la faible section efficace de l'interaction avec la matière des antineutrinos, le détecteur peut être placé hors de l'enceinte du réacteur pour une mesure non-intrusive.

4.1.1. Description du détecteur d'antineutrinos Nucifer

Le concept du détecteur d'antineutrinos Nucifer [74], [75] a été développé en s'inspirant des progrès techniques réalisés dans le cadre d'expériences de physique fondamentale telles que Double Chooz [26]. Le principe de détection choisi est le plus éprouvé, la scintillation liquide avec un dopant capturant les neutrons, et le processus de décroissance bêta inverse. Nucifer n'est pas le premier détecteur dédié à la non-prolifération avec ce principe de détection (citons le détecteur SONGS, d'efficacité 16%, construit par le Lawrence Livermore National Lab. et qui a pris des données près de la centrale de San Onofre, Californie [76]), mais sa particularité est d'avoir été conçue pour optimiser l'efficacité de détection en utilisant l'expertise développée dans la collaboration Double Chooz. Ses propriétés sont susceptibles d'intéresser l'Agence Internationale de l'Energie Atomique. La R&D du détecteur est également focalisée pour maximiser la suppression de bruit de fond, très élevé auprès d'un réacteur de recherche et proche de la surface.

Ce dernier point est un véritable défi pour la R&D des futurs détecteurs, car l'objectif serait de les placer en surface de la Terre, où les rayons cosmiques induits (muons et secondaires induits comme les neutrons et surtout en surface une composante hadronique des rayons cosmiques) deviennent importants.

La conception du détecteur a été réalisée en collaboration par le CEA / IRFU / SPP et SPPhN [77] de Saclay et le laboratoire CNRS/IN2P3/Subatech. La conception a été optimisée grâce au code GEANT4 [78] dédié à la simulation de la réponse du détecteur pour optimiser le rapport signal sur bruit de fond. Plusieurs mesures de bruit de fond ont été également

réalisées auprès du réacteur Osiris (CEA-Saclay) [73] auxquelles j'ai participé et auprès du réacteur de recherche ILL (Grenoble) [79] où il était envisagé que le détecteur soit installé.

Le principe de détection des antineutrinos est effectué via le processus de décroissance bêta inverse :

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n \quad 4.1$$

où le proton cible est le noyau d'un atome d'hydrogène d'un liquide scintillateur. Le positron produit un signal de lumière prompt capturé par les photomultiplicateurs (PMT) couplé optiquement avec la cible liquide.

Les positons vont créer un signal dit « prompt » en perdant son énergie dans la matière puis en s'annihilant avec un électron pour créer deux rayonnements gamma avec l'énergie E_{prompt} qui est proportionnelle à l'énergie cinétique de l'antineutrino incident plus sa masse au repos:

$$E_{\text{prompt}} = E_{\bar{\nu}_e} - (m_n - m_p) + m_e \quad 4.2$$

Le neutron est capturé, en moyenne 30 μ s après le signal prompt, par un noyau de Gadolinium (Gd) qui dope le liquide scintillant. C'est le temps nécessaire pour que les neutrons soient thermalisés puis capturés. La capture de neutrons sur Gd produit une cascade de rayons γ avec une quantité d'énergie totale d'environ 8 MeV. L'excès de masse dans le processus de décroissance bêta inverse implique un seuil de $M_n - M_p + M_e = 1,8$ MeV pour l'énergie d'un antineutrino [80].

Les deux sources principales de bruit de fond sont les muons cosmiques et des gammas générés par le réacteur, car le détecteur sera placé seulement à quelques mètres du cœur (mettre la valeur). Le premier type de bruit de fond peut donner lieu à un signal corrélé (protons de recul de diffusion des neutrons qui peuvent 'imiter' le signal du positon, puis la capture du neutron dans le Gd qui reproduit le signal retardé), tandis que le second type de bruit de fond contribue au signal accidentel (détection des rayons gamma qui "imitent" le signal prompt, plus la capture de neutrons accidentels). Le spectre gamma et le flux des neutrons ont été mesurés et simulés pour le réacteur Osiris [81]. L'énergie gamma maximale est d'environ 10 MeV.

Le détecteur est composé d'une cible pour la détection des antineutrinos, un veto à muons actifs [80] pour identifier le bruit de fond en provenance des muons cosmiques et un blindage aux neutrons et aux rayons gamma. Une vision globale de Nucifer est présentée sur la figure 4.1.1, tandis que la cible du détecteur et le module de veto-muons sont présentés séparément sur la figure 4.1.2.

La cible du détecteur d'antineutrinos est un réservoir cylindrique en acier (hauteur 1,8 m et 1,2 m de diamètre) avec une surface intérieure revêtue de peinture blanche en Téflon afin d'être compatible avec le liquide de scintillation et d'augmenter la diffusion de la lumière. Le réservoir est rempli d'environ 0,85 m³ de liquide de scintillation dopé en Gadolinium. Un disque en acrylique de 25 cm d'épaisseur couple optiquement les photomultiplicateurs (PMTs) à la surface du liquide tout en protégeant de la radioactivité intrinsèque des PMTs. L'objectif est d'assurer une réponse plus uniforme dans l'ensemble du volume de la cible. Seize photomultiplicateurs larges (8 pouces de diamètre) qui sont situés en haut de la cuve du détecteur garantissent une collection efficace de la lumière. Ils sont toujours conservés à l'intérieur de l'enceinte dans une atmosphère d'azote pour réduire le risque d'incendie. Un système de LED basé sur l'injection de lumière permet de surveiller le gain du PMT et les

dérives éventuelles des instruments. De plus, des sources radioactives pourraient être déployées au long de l'axe central de la cible à l'intérieur d'un tube vertical.

Deux couches étanches de blindage protègent le détecteur des gammas et des neutrons. A partir de la couche externe, nous pouvons trouver une couche de 10 cm de Plomb et une couche de 14 cm en polyéthylène.

Le détecteur de veto à muons est placé entre le blindage et la cible comme le montre la figure 4.1.1. Ceci est nécessaire afin de protéger le veto du flux de gamma de haute énergie provenant du cœur du réacteur. Le veto entoure $5/6^{\text{ième}}$ de la cible. Il est basé sur un concept original : 31 modules de détection, contenant chacun un scintillateur de 5 cm d'épaisseur en plastique, possédant une longueur de 150 à 170 cm et une largeur de 25 cm. Le scintillateur est observé par un photomultiplicateur découplé de sa surface. L'épaisseur du scintillateur a été choisie afin de discriminer les muons cosmiques des bruits de fond gamma. La technique utilisée est de placer un seuil en énergie assez haut pour couper un maximum des gammas. En effet, les muons cosmiques sont généralement des particules de haute énergie, de telle sorte que nous pouvons supposer que tous soient ionisés à la valeur minimale d'ionisation. Pour le scintillateur plastique, la valeur minimale d'ionisation dE/dx est d'environ $1,9 \text{ MeV.cm}^{-2}$. Par conséquent, une des plaques en plastique de 5cm doit voir une énergie moyenne déposée d'environ 10 MeV. Un tel seuil ne peut être appliqué pour éliminer les gammas sous ce seuil. En effet, la valeur de seuil dépend aussi de l'uniformité de collecte de lumière. Le choix d'un PMT par module a été fait pour respecter l'exigence de faible coût du projet donnée par l'AIEA, mais cela pénalise clairement l'uniformité de la réponse de modules à la collecte de la lumière. Afin d'optimiser la géométrie du module et de la position du PMT pour la réponse maximale de l'uniformité et d'étudier les performances du détecteur, le groupe ERDRE a développé un banc de tests et deux simulations basées sur GEANT4 et Litani [82]. La valeur finale de la non-uniformité mesurée est inférieure à un facteur 2,5. Le seuil de chaque module a été ajusté afin de minimiser la détection des gammas, tout en maximisant l'efficacité de détection de muons, supérieure à 95%. L'étalonnage du seuil d'énergie et de la performance des détecteurs ont été étudiées en effectuant plusieurs mesures sur un prototype de module: la détection du signal des muons, des mesures avec des sources de gamma (gamma-rapide d'Am/Be, ^{60}Co) et une campagne de mesures auprès du réacteur Osiris où le détecteur sera placé. Le seuil final en énergie estimé se situe entre 2 MeV et 5 MeV selon la position de l'événement à l'intérieur du scintillateur.

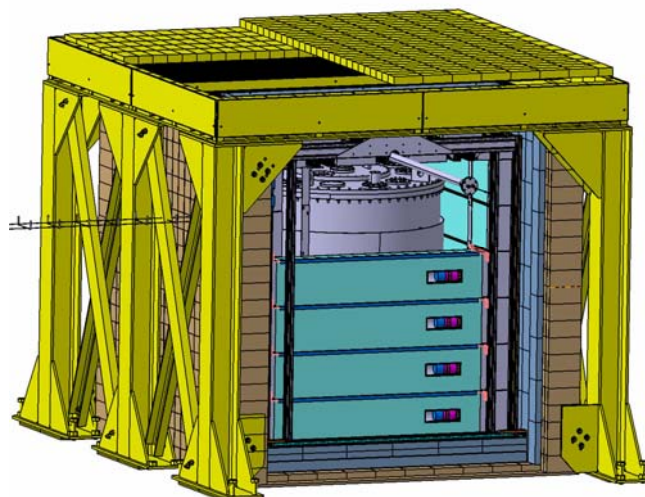


Fig. 4.1.1 : Le plan du détecteur Nucifer avec le blindage et le détecteur veto à muons.

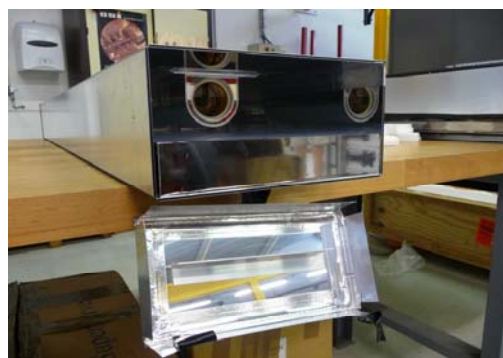
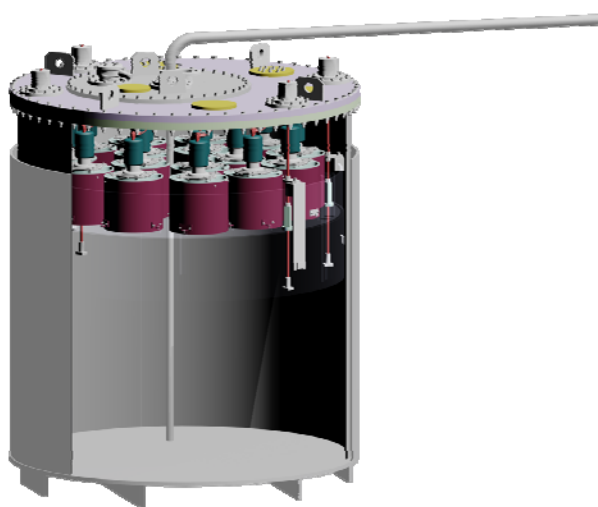


Fig. 4.1.2 : Gauche : Cible du détecteur d'antineutrinos. Droite : Intérieur d'un module du veto à muons.

La dimension globale, comprenant le blindage et le veto, est d'environ $2,8 \times 2,8 \text{ m}^2$. Un tel volume de cible compacte est très simple et sûr et assurera une efficacité de détection élevée. L'efficacité de détection des antineutrinos est limitée par l'efficacité de détection du positron e^+ (événement prompt) et de la capture radiative retardée des neutrons dans le Gd générés par la réaction bêta inverse. De la réponse du détecteur simulé, l'efficacité estimée est d'environ 50% lorsque l'on applique un seuil de 2 MeV sur l'énergie de détection des positons et de 4 MeV sur l'énergie de détection des cascades de rayons gamma.

4.1.2. Démarche actuelle

Le détecteur Nucifer avec sa cible, les veto-muons et le blindage ont été installés à proximité du réacteur de recherche Osiris du CEA de Saclay. Osiris est un réacteur de 70 MWth. Nous avons installé le détecteur à 7 m du cœur à une profondeur de 15 mètres équivalent eau. La prise de données a débuté au printemps 2012 pour environ un an afin d'évaluer la réponse du détecteur Nucifer aux antineutrinos. Les périodes de « Réacteur OFF » (10 jours après chaque cycle de 20 jours) permettront l'étude du bruit de fond cosmique et d'optimiser sa réjection.

L'étape suivante consisterait à déployer le détecteur Nucifer, éventuellement dans un pays sous garantie de l'AIEA, pour finalement démontrer le potentiel du concept Nucifer, en collaboration avec l'AIEA.

4.2. Réacteur de recherche Osiris

4.2.1. Réacteur de recherche Osiris

Osiris est un réacteur expérimental d'une puissance thermique de 70 MW [73]. C'est un réacteur de type piscine à eau légère et à cœur ouvert ($57 \times 57 \times 60 \text{ cm}^3$) dont le but principal est d'effectuer des essais et d'irradier sous un haut flux de neutrons des éléments combustibles et des matériaux de structure des centrales électronucléaires de puissance ainsi que de produire des radioéléments pour l'industrie et la médecine.

Le réacteur Osiris a également une autre mission très importante aujourd'hui : la production de radio-isotopes artificiels utilisés en curiethérapie et en imagerie médicale, qui a repris à partir du 25 novembre 2010 après plusieurs mois de travaux. Osiris assure ainsi la fourniture de 5 à 7 % de la production mondiale de technétium 99m, utilisé lors des scintigraphies pour le diagnostic des pathologies osseuses et cardiaques. On estime que près d'1 million de protocoles au technétium sont effectués chaque année en France dans les 220 services de médecine nucléaire, et 8 millions en Europe.

Le cœur du réacteur OSIRIS est entouré par une piscine d'une profondeur de 11 m, d'une longueur de 7,5 m et d'une largeur de 6,5 m. Le principe de conception d'un réacteur piscine et à cœur ouvert permet l'accès direct au cœur, facilité par l'absence de cuve de pressurisation. L'eau de refroidissement est guidée par un caisson entouré du cœur du réacteur. Ce caisson en Zircaloy a une section rectangulaire de 4 cm d'épaisseur. La présence du caisson non seulement impose le sens de circulation de l'eau de refroidissement, positionne les éléments placés à l'intérieur mais aussi limite le mélange entre l'eau sortante fortement activée et l'eau de la piscine.

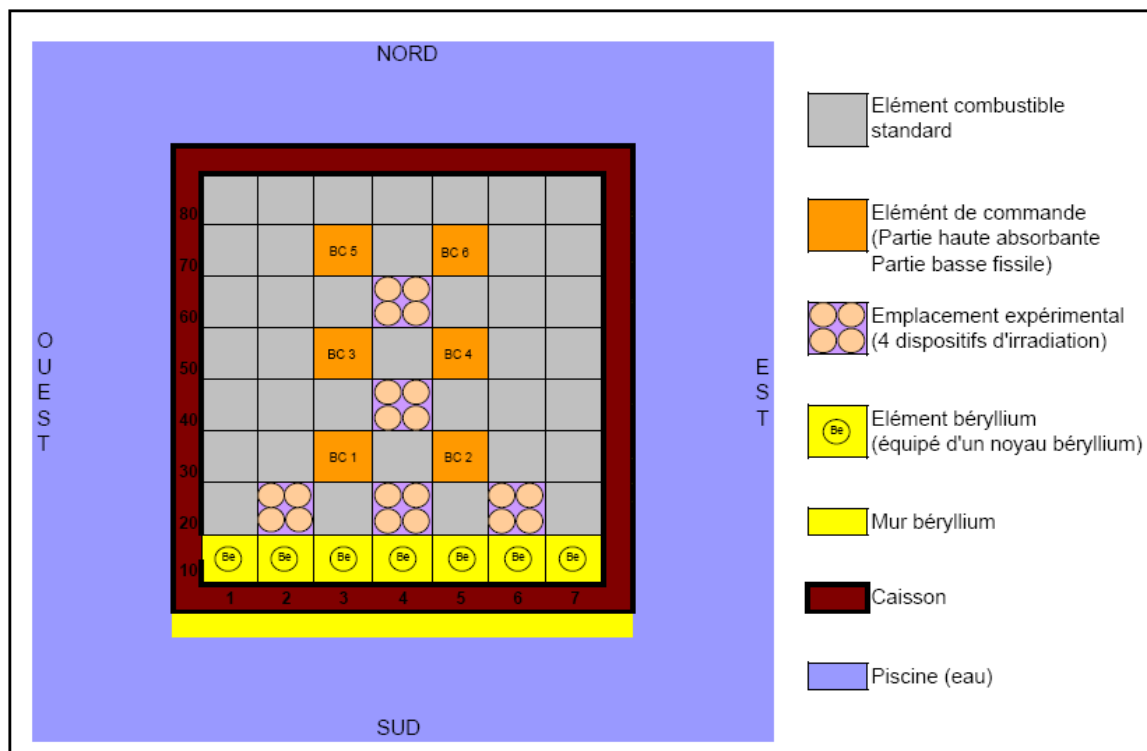


Fig. 4.2.1 : Section horizontale du cœur du réacteur Osiris [83].

Le cœur du réacteur d'OSIRIS est occupé par un bloc de 8x7 [73] assemblages avec un mur de béryllium à côté des assemblages et un autre à l'extérieur du caisson. Le cœur comprend 38 assemblages de plaques de combustible standard, 6 assemblages pour le contrôle-commande du réacteur et 5 emplacements pour des tests expérimentaux. Autour des assemblages se trouve le caisson en Zircalloy.

Le réacteur OSIRIS utilise un combustible dit siliciure constitué par alliage U_3Si_2Al . L'uranium est enrichi jusqu'à 19,75% en isotope ^{235}U en respectant au programme de non-prolifération avec une limite à 20% en isotope ^{235}U .

Un assemblage de combustible contient 22 plaques d'épaisseur 0,51 mm et gainées par de l'Aluminium d'épaisseur 0,38mm. L'épaisseur du canal de refroidissement entre deux plaques est de 2,46 mm. Les deux plaques de rive sont chargées en poison consommable (Bore).

La partie de contrôle-commande comprend deux parties : une partie absorbante en Hafnium et une partie de combustible fissile. Ce combustible contient 17 plaques de constitution identique aux plaques standards. L'épaisseur du canal de refroidissement entre deux plaques est de 2,79 mm. Deux barres (N° 2 et 5), dites de sécurité, assurent l'arrêt d'urgence du réacteur. Les quatre autres barres servent l'une après l'autre (souvent dans l'ordre 1, 6, 3, 4) de barre de compensation et de barre de pilotage. Une seule barre est manœuvrée à la fois.

Les emplacements expérimentaux sont composés de jusqu'à quatre tubes contenant chacun un four Chouca à l'intérieur

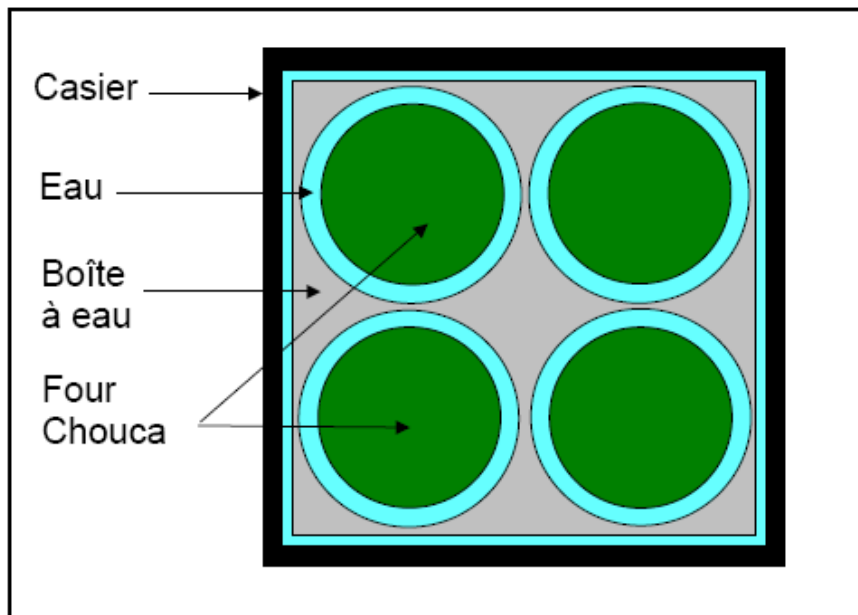


Fig. 4.2.2 : Section horizontale d'un emplacement équipé de 4 fours Chouca [83].

Le réacteur fonctionne en moyenne 200 jours par an, par cycle d'une durée variant de 3 à 5 semaines avec des périodes d'arrêt de l'ordre de 10 jours entre deux cycles. L'arrêt est nécessaire pour assurer le rechargement du cœur en combustible, procéder aux opérations de maintenance légère et aux manutentions requises par les expériences. La maintenance plus conséquente est assurée pendant des arrêts dédiés de plus longue durée.

Afin de préparer la conception du détecteur d'antineutrinos Nucifer, des mesures de bruits de fond ont été effectuées dans la casemate du réacteur Osiris (niveau -11m, voir figure 4.2.3). Nucifer est actuellement le seul détecteur d'antineutrinos dédié à la non-prolifération installé auprès d'un réacteur de recherche. En plus du défi d'être proche de la surface (15 m.w.e), l'expérience doit également s'affranchir au mieux du bruit de fond induit par le fonctionnement du réacteur lui-même, plus important que lors d'une installation près d'un réacteur de puissance, du fait de la plus grande proximité du réacteur.

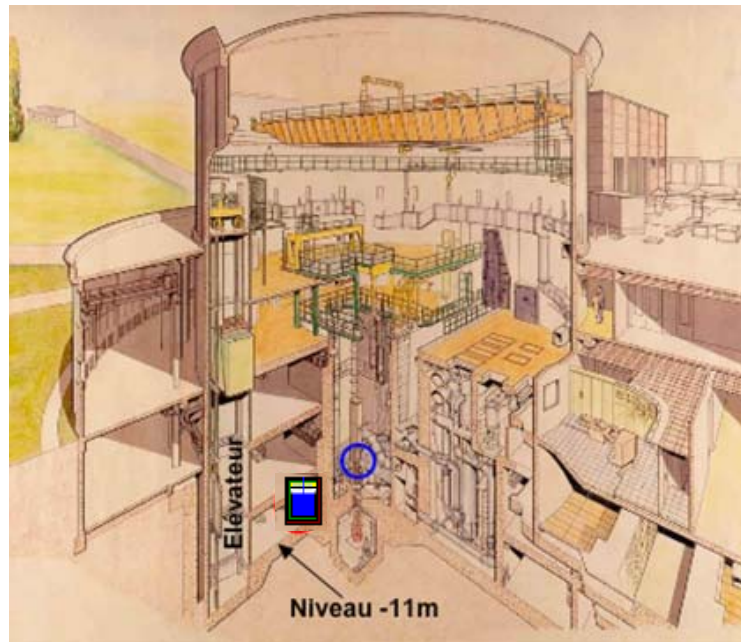


Fig. 4.2.3 : Position de casemate dans le bâtiment du réacteur Osiris [84].

Au-delà de l'intérêt d'en comprendre l'origine, l'intérêt de simuler ce bruit de fond est de le confronter à des mesures qui permettront la validation de l'outil de simulation). Ce type de simulation pourra alors être utilisé dans toute expérience similaire d'antineutrinos des réacteurs dédiée à la non-prolifération ou encore à la recherche des neutrinos stériles, impliquant une grande proximité avec un réacteur [85]. Typiquement, c'est l'objet de l'installation du détecteur CORMORAD près d'un réacteur CANDU en Roumanie. Ce détecteur contient environ d'un m^3 de liquide de scintillateur en Gd, ce qui permettrait une détection d'environ 90 antineutrinos par heure.

La validation de la simulation des photons émis lors du fonctionnement d'un réacteur nucléaire est également importante pour nos travaux concernant la puissance résiduelle des réacteurs.

4.2.2. Contraintes pour l'expérience générées par les bruits de fond

Pendant les mesures, les bruits de fond peuvent perturber les résultats, en particulier avec la détection de particules interagissant très peu comme les neutrinos. Les bruits de fonds dans la casemate du réacteur Osiris viennent non seulement de l'extérieur mais aussi du réacteur en fonctionnement. La source extérieure provient essentiellement des muons cosmiques. En effet, le bruit de fond hadronique est éliminé par les 15 m.w.e qui protègent malgré tout l'expérience. Par contre, le bruit de fond provenant du réacteur est composé principalement de gammas, de neutrons en provenance du réacteur et des structures.

Afin de bien comprendre les comportements des bruits de fond, plusieurs mesures auxquelles j'ai participé ont été réalisées dans la salle casemate selon la situation du réacteur : en fonctionnement ou à l'arrêt [81]. Pour mesurer les spectres des gammas, un détecteur de type Ge a été installé dans la casemate. Un détecteur de type compteur à ^3He entouré de polyéthylène a été utilisé pour la mesure du flux de neutrons thermiques ainsi qu'un détecteur

à scintillation (NE213) pour celui des neutrons rapides. Le bilan des mesures est présenté dans le tableau 4.2.1

	γ dans Nucifer $E > 1.5 \text{ MeV}$	μ facteur d'att (cm^{-1})	n_{th} ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	n_{fast} ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)
Osiris Off	5 kHz	2.7	$1.2 \cdot 10^{-4}$	$2.3 \cdot 10^{-4}$
Osiris On	5 MHz	2.7	$1 \cdot 10^{-3}$	$2.3 \cdot 10^{-4}$

Tableau 4.2.1 : Bilan des mesures de bruit de fond effectuées au niveau de l'emplacement du détecteur Nucifer près du réacteur de recherche OSIRIS de Saclay [81].

Des mesures plus récentes du spectre en énergie des photons lorsque le réacteur OSIRIS était en fonctionnement ont été réalisées en 2010 au niveau du futur emplacement du détecteur Nucifer. Ce spectre est présenté sur la figure 4.2.3. On voit que les photons produits peuvent atteindre une énergie élevée, qui dépasse la gamme en énergie du détecteur Ge utilisé. Ces mesures ont été répétées à plusieurs reprises mais nous n'avons finalement pas de spectre fiable. En effet l'efficacité des détecteurs Ge devient très faible à haute énergie et l'électronique n'était pas adaptée pour aller au-delà de 6 MeV. Le tableau 4.2.2 donne les quelques raies identifiées au-dessus de 5 MeV dans le spectre de la figure 4.2.3 [86]. Tirant profit du fait que nous développons une simulation du cœur du réacteur OSIRIS pour prédire le spectre et le flux des antineutrinos émis pour l'expérience, nous avons décidé de simuler également le bruit de photons émis par le réacteur OSIRIS, et de le propager jusque dans la casemate de mesure.

Dans les paragraphes qui suivent, nous présenterons dans un premier temps notre première simulation du cœur du réacteur OSIRIS. Il s'agit de développer une simulation avec prise en compte du rechargement afin d'estimer la composition du cœur du réacteur à l'équilibre, en l'absence de données sur les compositions des éléments combustibles pour un cycle du réacteur OSIRIS. Ces simulations nous permettront aussi de déterminer la variation du flux d'antineutrinos à chaque rechargement et si nous serons sensibles aux fissions du ^{239}Pu . Dans une seconde partie, nous exposerons les simulations réalisées avec le code MCNPX pour étudier le bruit de fond photonique provenant du réacteur OSIRIS.

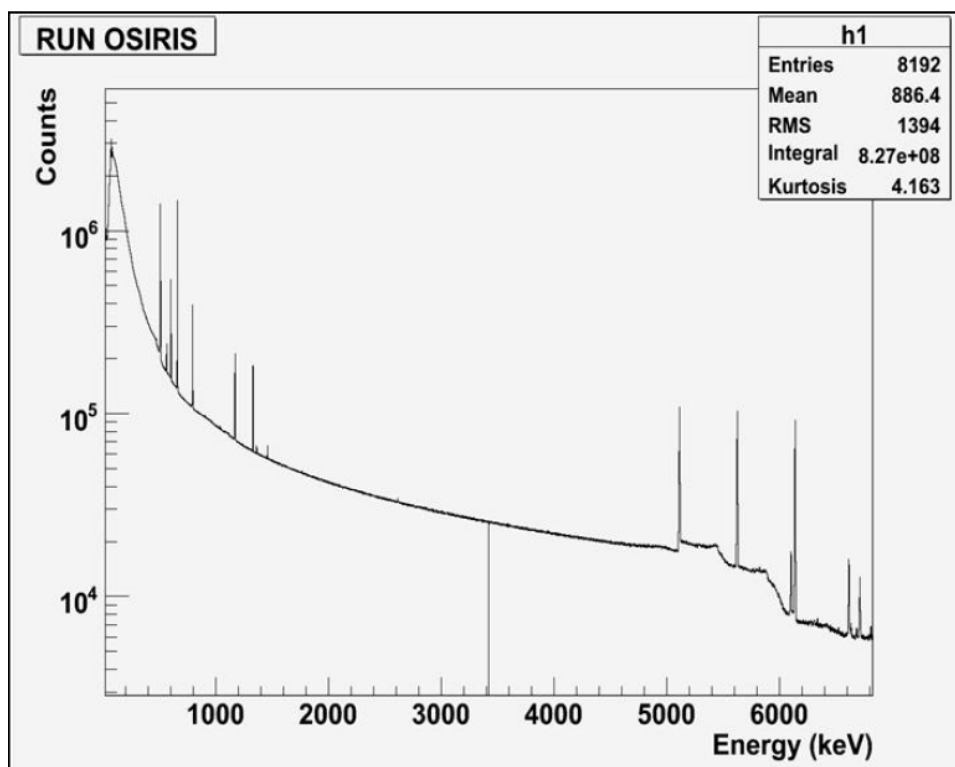


Fig. 4.2.4 : Spectre mesuré avec un détecteur au Ge du bruit de fond gamma dans la casemate OSIRIS.

Isotope	Energie table(keV)	processus	Mesure(keV)
Si 28	5106.74	(n, γ)	5110
Al27	5633.60	DI	5635
Pu239	5633.60	(n, γ)	5635
Al27	6101	(n, γ)	6099
O16	6128.63	DI	6135
Al27	6710	(n, γ)	6710

Tableau 4.2.2 : Raies gamma identifiées dans la partie haute énergie du spectre de la figure 4.2.3 [86].

4.3. Simulation des antineutrinos émis par le réacteur de recherche Osiris

La simulation a été effectuée en trois parties : la première est la simulation du cœur seul (C), la deuxième est la simulation du cœur avec la piscine (CP) et la dernière est la simulation d'un réacteur complet, de la piscine, du mur en béton (CPM) jusqu'à la casemate où sera localisé le détecteur NUCIFER pour la prédiction des bruits de fond gamma.

La première simulation neutronique du réacteur Osiris a été réalisée avec MCNPX 2.5e et MURE. Une source de neutrons propagée avait été créée pour réduire le temps de calcul. Cette source, caractérisée par 50000 particules source, 300 cycles actifs et 1000 cycles

inactifs, est ensuite utilisée comme source initiale dans la simulation du réacteur Osiris avec les conditions suivantes : 20000 particules source, 250 cycles actifs et 100 cycles inactifs. Le traitement thermique de l'eau $S(\alpha, \beta)$ et l'option `SetMultigroupDecade(10)` ne sont pas pris en compte dans un premier temps pour la simulation neutronique du réacteur Osiris. De plus, le cœur du réacteur Osiris dans la simulation neutronique présentée ci-dessous n'est pas discrétisé (1 seul univers). Le cœur du réacteur sera discrétisé en plusieurs univers dans le cas de la simulation du rechargement du réacteur avec un plan de rechargement de $1/7^{\text{ème}}$ du cœur ; ce qui correspondra donc à 7 univers. De même les simulations du cœur du réacteur à l'équilibre et des antineutrinos émis prennent en compte le traitement thermique de l'eau, et l'option `SetMultigroupDecade(10)` pour plus de précision. La base de données de sections efficaces utilisée en priorité pour la simulation est ENDF-B6.

4.3.1. Géométrie simulée

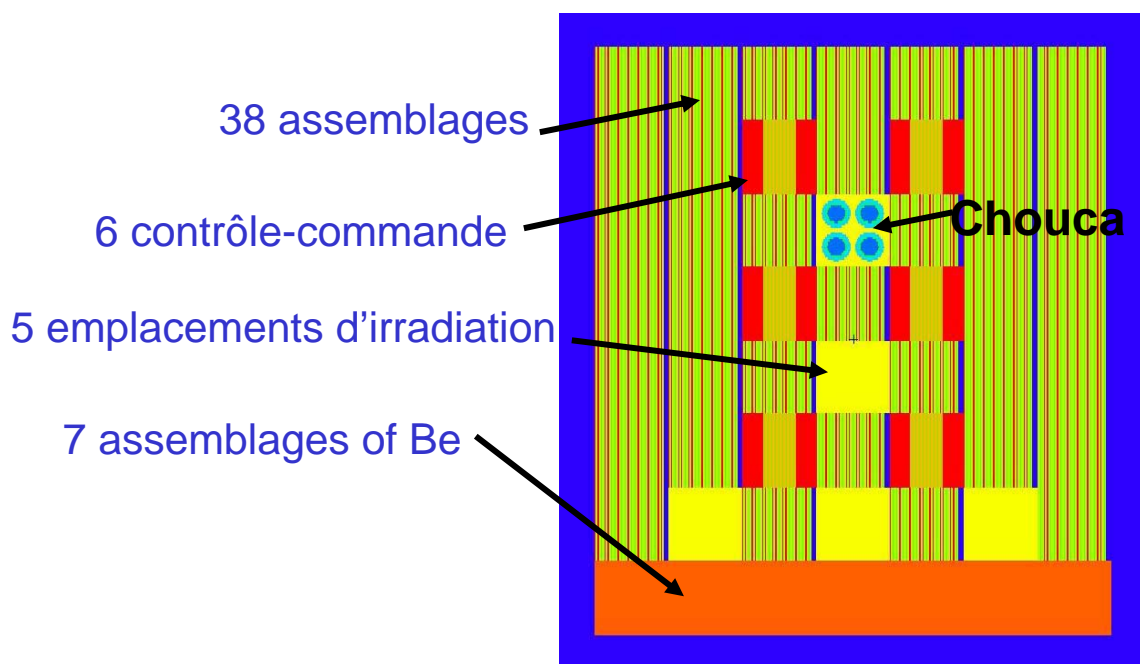


Fig. 4.3.1 : Section horizontale du cœur du réacteur OSIRIS simulé.

N'ayant accès dans un premier temps qu'à des informations publiques, nous avons peu de détails sur la géométrie des éléments du cœur du réacteur [87], [88]. Notre premier objectif était de vérifier la pertinence de la simulation en la comparant avec les résultats de la thèse de F. Malouch, thèse qui portait sur le réacteur Osiris simulé avec le code déterministe Apollo [83].

La fig. 4.3.1 illustre le profil du cœur du réacteur Osiris avec les assemblages des plaques de combustible, des éléments de contrôle-commandes, des emplacements expérimentaux, le mur de béryllium et le caisson extérieur.

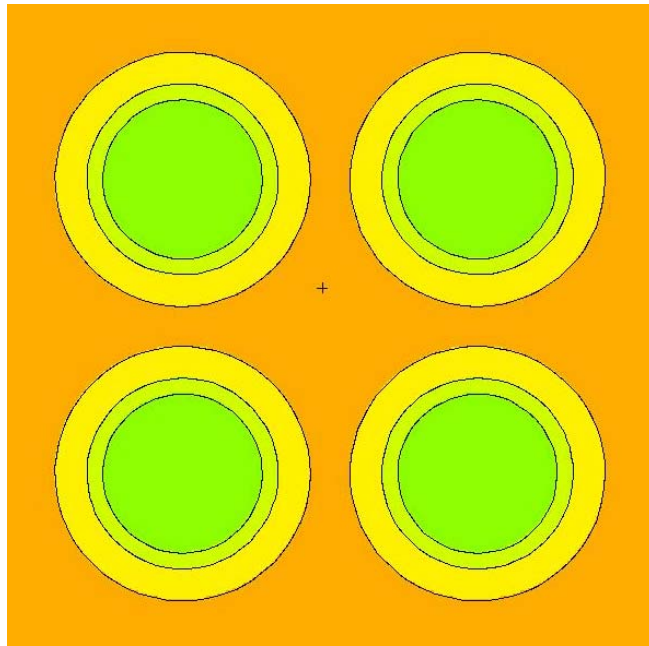


Fig. 4.3.2 : Simulation du four Chouca pour l'emplacement expérimental.

La géométrie simulée des fours Chouca, où des dispositifs sont placés pour des mesures expérimentales (comme la mesure du flux de neutrons dans le réacteur par ex.), est illustré dans la fig. 4.3.2. Le résultat du flux des neutrons dans le four sera comparé à celui de F. Malouch et présenté dans la partie suivante.

Après cette première étape de validation par comparaison avec les résultats obtenus par F. Malouch, la géométrie de simulation est étendue en ajoutant la piscine et le mur de béton pour une simulation complète.

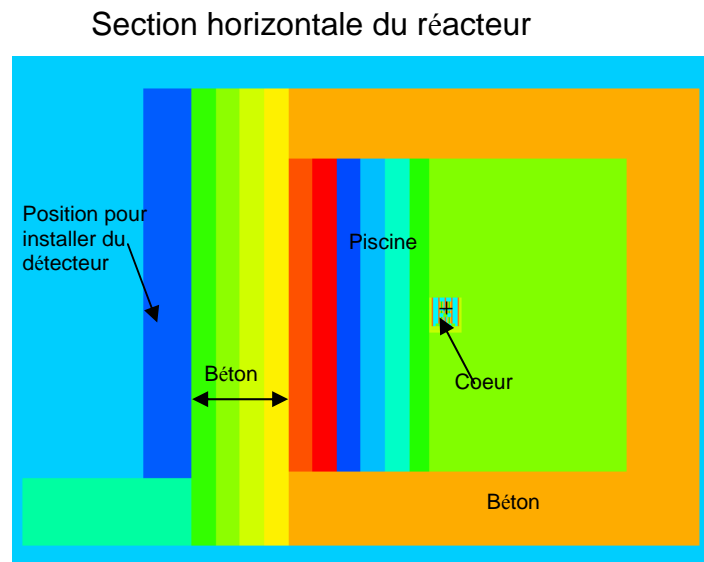


Fig. 4.3.3 : Section horizontale du réacteur OSIRIS simulé.

La figure 4.3.3 montre cette fois la simulation du cœur du réacteur, l'enceinte de béton (orange), la piscine discrétisée en plusieurs "couches" (vert, bleu et rouge) et la casemate OPERA (jaune vert pour le mur de béton et bleu pour l'air).

Les neutrons, les gammas sortis du cœur du réacteur vont interagir tout d'abord avec le caisson autour du cœur, ensuite avec l'eau et éventuellement avec le mur de béton.

Dimension du cœur (dans la simulation)	0.65442x0.65442x0.68 m ³
Largeur de la piscine (entre cœur et mur béton)	2.92279 m
Largeur du mur de béton	2 m
Puissance	70 MW
Combustible	U ₃ Si ₂ Al enrichi à 19.75%
Modérateur	H ₂ O
Réflecteur	H ₂ O, Béryllium

Tableau 4.3.1 : Principales caractéristiques du réacteur Osiris [83], [87].

4.3.2. Résultats de simulation

4.3.2.1. Résultats de la simulation du cœur nu

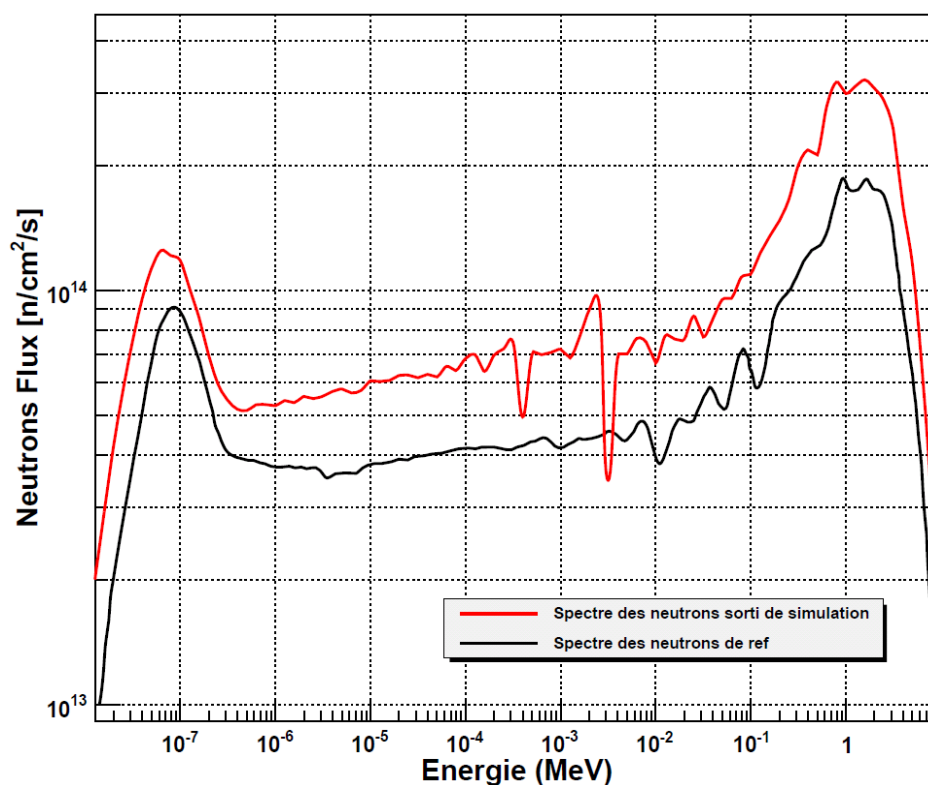


Fig. 4.3.4 : Spectre simulé des neutrons dans le four Chouca et comparaison avec celui de référence simulé par F. Malouch [83].

Le combustible utilisé est neuf, le spectre de neutrons est pris au 5^{ème} jour après le démarrage du réacteur. La simulation est réalisée à puissance nominale constante.

Ce spectre des neutrons est rebinné par un facteur 40 afin d'être comparable au spectre publié dans la thèse de F. Malouch. Sur la figure 4.3.4, on voit la similitude entre les deux spectres. L'allure générale est la même mais il existe des différences notamment dans la zone épi-thermique entre 300 eV et 3 keV où les pics se creusent. Plusieurs hypothèses sont formulées pour expliquer ces différences. Les bases de données utilisées avec MCNPX

sont des bases de données continues (ENDFBVI.8), tandis que celles utilisées avec le code APOLLO sont des bases multigroupes, très probablement JEF22. De plus il se peut que les bases que nous avons utilisées soient plus récentes. Les niveaux absolus de flux étant différents, il est également possible que les puissances utilisées ne soient pas les mêmes. Cependant, nous nous intéressons plus à la forme du spectre en énergie des neutrons. Nous comparons donc le rapport entre le flux thermique et le flux rapide dans ces 2 simulations et calculons un rapport de 2,56 entre les 2 maxima tandis que le spectre en énergie des neutrons obtenu par F. Malouch présente un rapport de 2,05. Ce qui montre l'importance de la manque de courbe de puissance du réacteur, le plan de rechargement, les information de base de donnée.

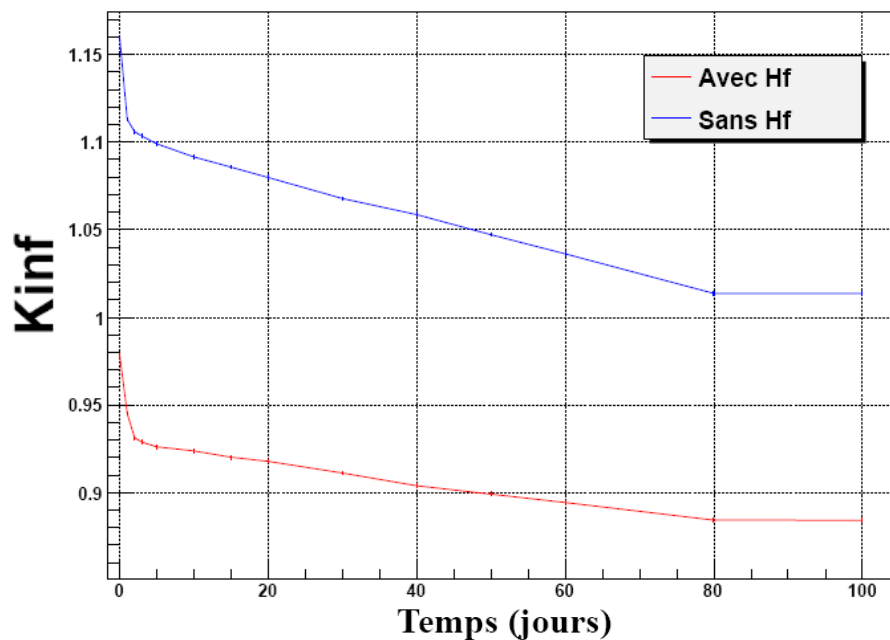


Fig. 4.3.5 : Comparaison du facteur de multiplication infini avec et sans la présence d'Hafnium.

Pour le contrôle du réacteur Osiris, une quantité de Hafnium est injectée dans les six emplacements de contrôle-commande du réacteur comme poison neutronique. La figure 4.3.5 montre la différence dans le cas où le contrôle-commande est rempli soit pour moitié de Hafnium et moitié d'eau (courbe rouge), soit en totalité d'eau (courbe bleue) c'est à dire sans Hafnium, ni Bore. Au démarrage du réacteur, la production de Xénon fait chuter brutalement le facteur de multiplication. Ensuite le coefficient de multiplication effectif diminue avec la création des produits de fission et l'usure du combustible. L'écart entre ces deux situations est de l'ordre de 15000 pcm, qui donne une bonne réserve d'anti-réactivité dans la sûreté et le contrôle du réacteur.

4.3.2.2. Rechargement du réacteur Osiris

Le cœur du réacteur est simulé pendant plus de 200 jours avec une période de rechargement de vingt jours, par septième du cœur.

Le principe du rechargement est décrit dans le tableau suivant :

6	6	5	5	5	7	7
6	2	BC5	3	BC6	2	7
4	3	1	E	1	3	4
4	2	BC3	1	BC4	2	4
4	3	1	E	1	3	4
7	2	BC1	3	BC2	2	6
7	E	5	E	5	E	6

Tableau 4.3.2 : Plan de rechargement adapté pour l'étude de rechargement du réacteur Osiris.

Dans ce tableau, la notation BC signifie Barre de Contrôle et E signifie Emplacement expérimental. Les chiffres correspondent à l'ordre du rechargement du combustible dans le réacteur. A chaque rechargement, la partie une sera remplacée par la partie deux et ainsi de suite jusqu'à la partie six. La partie sept sera rechargée par du combustible neuf.

Noyau	Masse initiale du cœur [kg]	Masse [kg] de combustible avant et après 260 jours	
		Avant	Après
^{235}U	20.318	13.2005	14.749
^{238}U	82.245	81.1186	81.3628
^{239}Pu	0	0,5139	0,415
^{241}Pu	0	0,0446	0,0323

Tableau 4.3.3 : Illustration des masses de combustible dans le cœur juste avant et après de rechargement à 260 jours.

Le tableau 4.3.3 présente l'évolution avant et après chaque rechargement de la composition du combustible pour les éléments fissiles: ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu . Cette différence de masse du combustible représente la variation de masse du combustible dans le réacteur pendant les vingt jours d'un cycle, pour le réacteur à l'équilibre. A chaque phase de rechargement, une fraction de la masse de ^{239}Pu et ^{241}Pu est retirée. Par contre, la masse de ^{235}U et ^{238}U est augmentée d'une quantité de 1,5485 kg et 0,2442 kg respectivement. La variation de masse du ^{239}Pu et ^{241}Pu est de -0,0989 kg et -0,01224 kg respectivement. La masse décrite représente environ un septième du cœur.

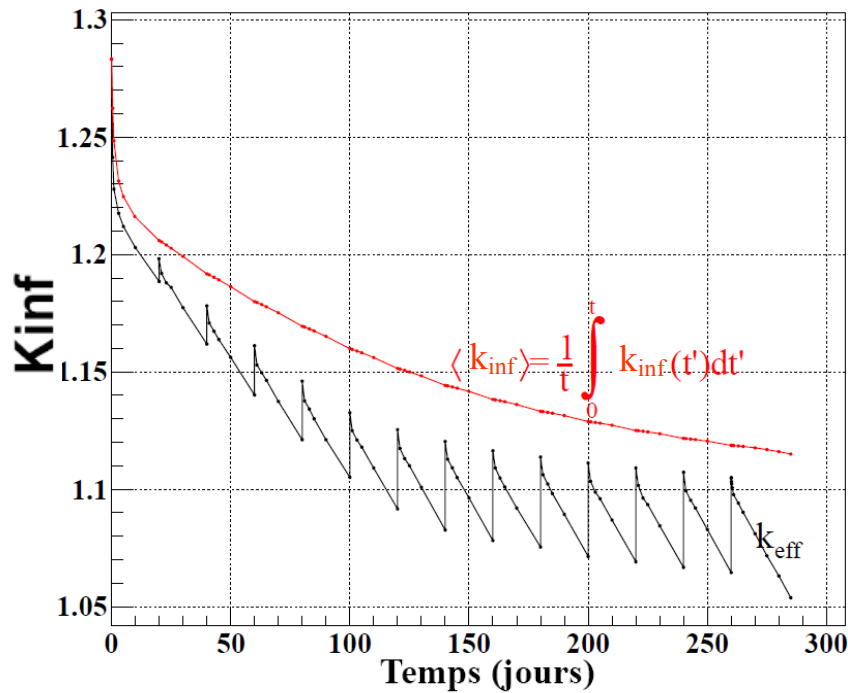


Fig. 4.3.6 : Facteur de multiplication infini simulé avec un rechargement d'un 1/7 par cycle.

Comme prévu, le facteur de multiplication infini descend très vite au début de démarrage du réacteur à cause de la création de Xénon jusqu'à quelques jours. Puis, la courbe descend encore mais d'une façon moins brutale. A partir de dix jours, la matière fissile, ici l' ^{235}U , diminue de moins en moins vite mais une quantité non-négligeable de ^{239}Pu , ^{241}Pu est créée provenant de l' ^{238}U , qui va compenser partiellement la perte d' ^{235}U .

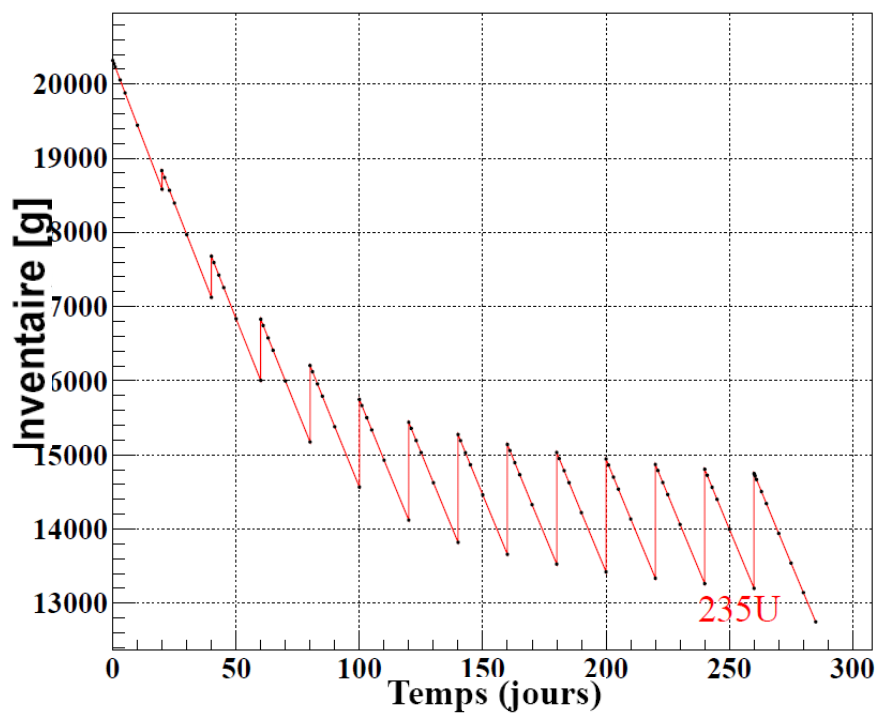


Fig. 4.3.7 : Simulation de l'inventaire en ^{235}U dans le réacteur Osiris avec un rechargement 1/7 par cycle.

Le rechargement d'un septième du combustible du cœur tous les vingt jours est simulé. Les inventaires sont présentés sur les figures 4.3.7 à 4.3.9. On peut voir que pour que le cœur atteigne l'équilibre (voir le tableau 4.3.4) il faut attendre plus de 7 rechargements. En effet, l'inventaire de l' ^{235}U continue à décroître, ce qui provient sans doute du caractère asymétrique fort du cœur du réacteur OSIRIS. En effet, le comportement neutronique dépend de quel groupe d'assemblages est rechargé à chaque cycle (bords, centre, proches des emplacements expérimentaux ou des barres de contrôle...).

	1	2	3	4	5	6	7
Au démarrage	N	N	N	N	N	N	N
20 jours (jours)	20	20	20	20	20	20	N
40 jours (jours)	40	40	40	40	40	20	N
60 jours (jours)	60	60	60	60	40	20	N
80 jours (jours)	80	80	80	60	40	20	N
100 jours (jours)	100	100	80	60	40	20	N
120 jours (jours)	120	100	80	60	40	20	N
140 jours (jours)	120	100	80	60	40	20	N

Tableau 4.3.4 : Caractéristique du combustible dans les 7 groupes d'assemblages du cœur du réacteur Osiris. Les nombres correspondent au nombre de jours où le combustible réside dans le cœur.

Il faut attendre jusqu'à environ 260 jours pour voir les courbes tendrent vers l'équilibre. Le point à 260 jours est le début de 3^{ème} cycle de rechargement dans toutes les parties du cœur. Il faut attendre que, la 7^{ème} partie doit passer 120 jours dans le cœur, soit un cycle complet à partir de 2^{ème} cycle pour que le cœur atteinte l'équilibre, donc 260 jours.

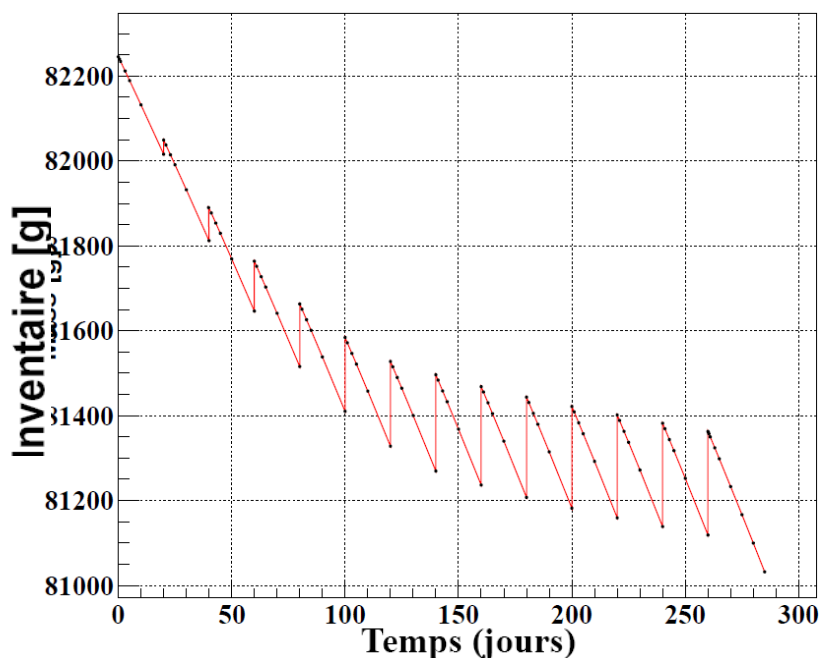


Fig. 4.3.8 : Simulation de l'inventaire en ^{238}U dans le réacteur Osiris avec un rechargement 1/7 par cycle.

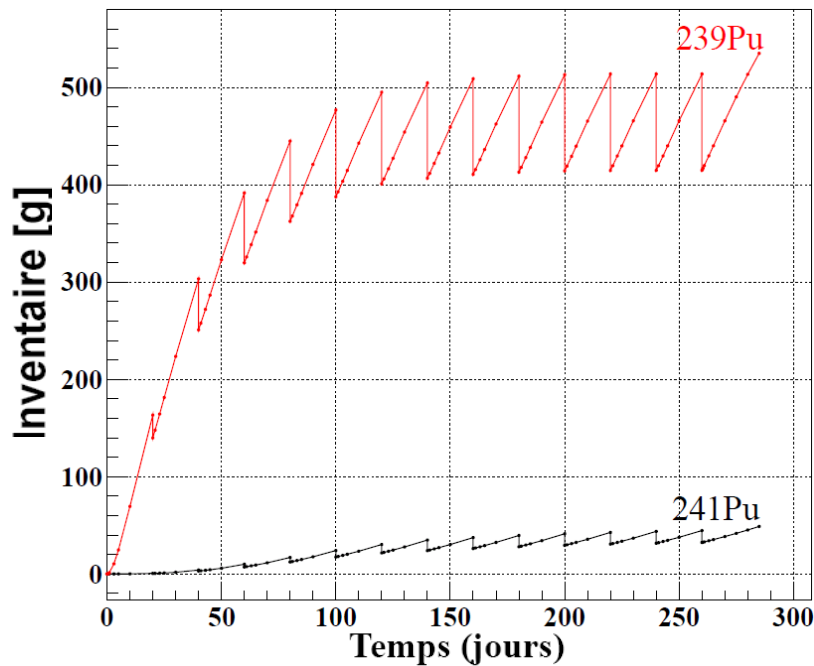


Fig. 4.3.9 : Simulation de l'inventaire en ^{239}Pu et ^{241}Pu dans le réacteur Osiris avec un rechargement 1/7 par cycle.

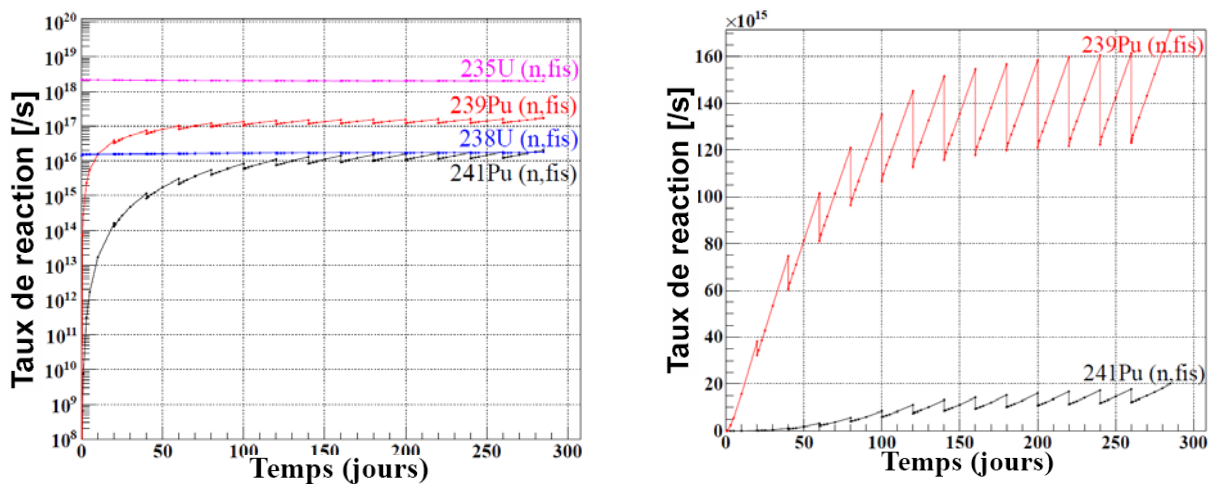


Fig. 4.3.10 : Taux de fission de quatre noyaux principaux : ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu dans le réacteur Osiris avec un rechargement 1/7 par cycle.

Les taux de fission sont fortement contraints par l'obligation de délivrer toujours la même puissance au cours de l'évolution. La figure 4.3.11 présente la contribution aux fissions des trois noyaux : ^{238}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu . La contribution du ^{239}Pu représente de l'ordre de 4.5% des fissions de l' ^{235}U dans cette simulation préliminaire à la fin d'un cycle, on s'attend donc si la composition du combustible prise ici est correcte, à mesurer un spectre d'antineutrinos provenant quasi uniquement de l' ^{235}U avec Nucifer.

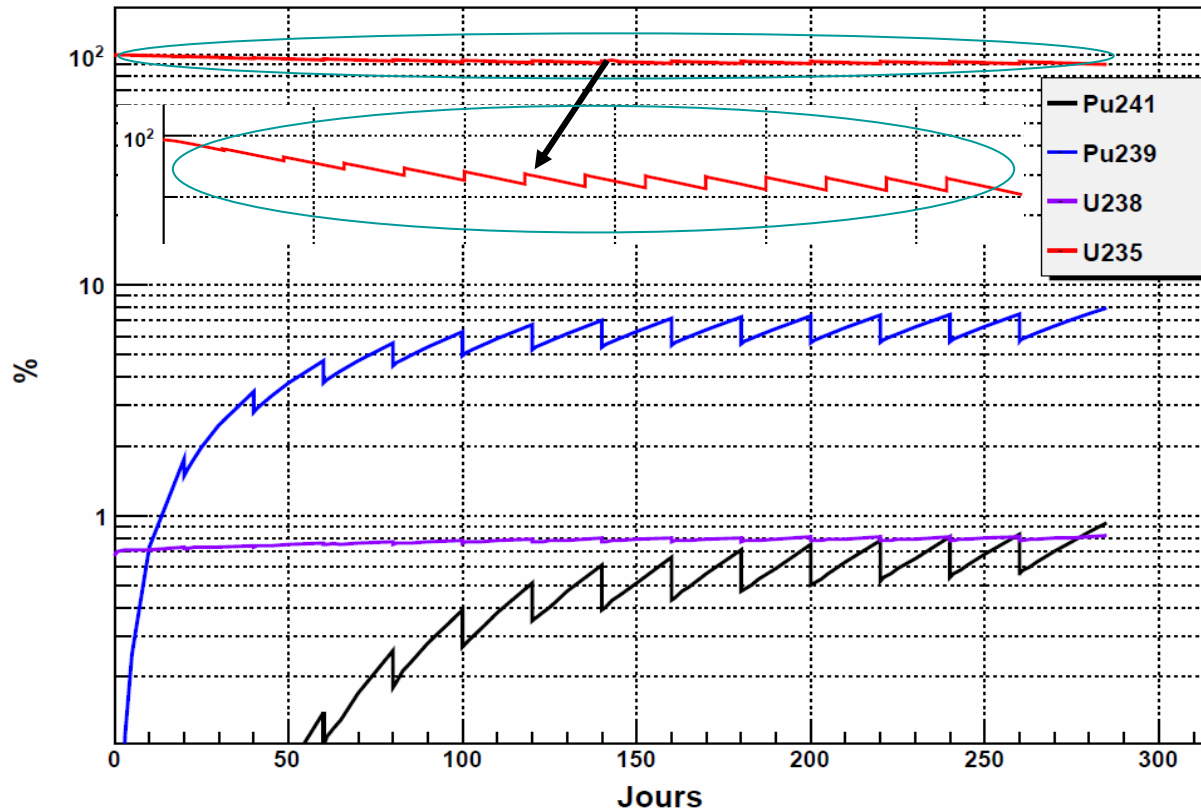


Fig. 4.3.11 : Distribution de taux de fission parmi les 4 noyaux principaux ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu .

4.3.3. Calcul du flux d'antineutrinos associé

4.3.3.1. Résultats de simulation avec du cœur nu. Calcul réalisé avec les concentrations des produits de fission de MURE

Il s'agit de la méthode appelée « méthode ab initio » ou encore méthode par sommation qui calcule le spectre en énergie des antineutrinos en sommant toutes les contributions provenant des branches de décroissance bêta des produits de fission. Cette méthode a été présentée dans le chapitre précédent. Le choix des données de décroissance suit la prescription de [50] et inclut donc les dernières mesures TAGS publiées. On peut voir les flux d'antineutrinos émis obtenus correspondant à la simulation présentée précédemment sur la figure 4.3.12.

Selon cette première simulation, la variation du flux d'antineutrinos le long d'un cycle du réacteur OSIRIS est de 2-3%. Cette variation est faible en raison de l'enrichissement important du combustible en ^{235}U , qui minimise les contributions aux fissions des autres noyaux tels que le ^{239}Pu ou le ^{238}U . D'un côté, ceci peut être un avantage pour l'expérience Nucifer, puisque si la résolution en énergie du détecteur est bonne, Nucifer pourra mesurer un spectre des antineutrinos provenant des produits de la fission de l' ^{235}U quasi-pur. De plus, le spectre en énergie des antineutrinos de l' ^{235}U est le mieux déterminé à ce jour, ce qui permettra de diminuer les erreurs systématiques associées à la prédiction des antineutrinos

pour l'expérience. D'un autre côté, il serait également intéressant de mesurer la contribution des fissions du ^{239}Pu pour estimer la sensibilité de Nucifer pour études de non-prolifération.

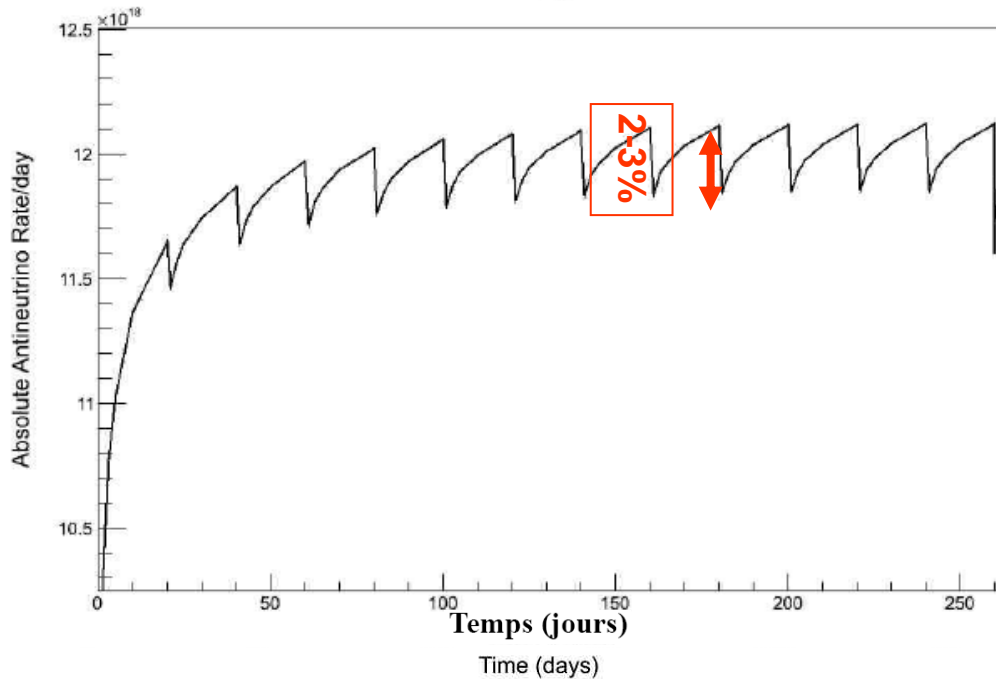


Fig. 4.3.12 : Flux d'antineutrinos émis obtenus correspondant à la simulation présentée.

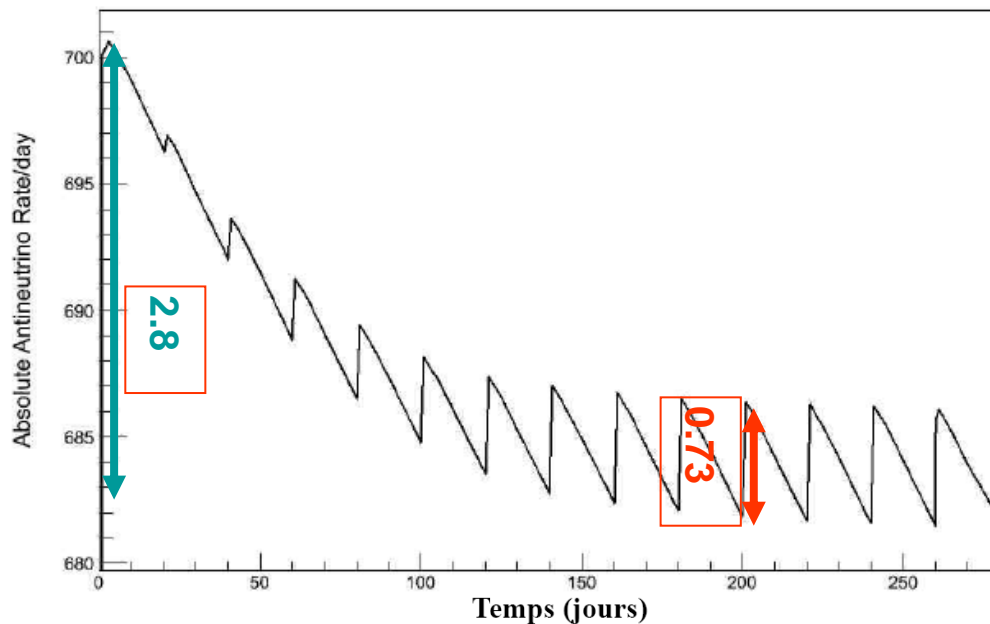


Fig. 4.3.13 : Flux d'antineutrinos détectés dans un détecteur de 'jeu' placé à 7m du réacteur OSIRIS.

Sur la fig. 4.3.13, le flux d'antineutrinos détecté dans un détecteur de type Nucifer placé à 7m du réacteur OSIRIS et en supposant une efficacité de détection de 50%. La cible utilisée est la cible initialement prévue pour le détecteur. Elle contient 1.1t de scintillateur liquide, soit un peu plus que la cible finalement installée.

4.3.3.2. Calcul réalisé en utilisant les spectres de référence

Pour l'expérience Nucifer, et notamment pour répondre à l'objectif de physique fondamentale de l'expérience que nous ne détaillerons pas ici, une autre méthode de calcul du spectre d'antineutrinos sera employée. Nous utiliserons les spectres de référence les plus récemment publiés par P. Huber [48] afin de minimiser les erreurs systématiques associées à la prédiction des spectres. Pour calculer le spectre en énergie et le flux des antineutrinos il suffira alors d'effectuer le produit entre les taux de fission issus de la simulation MURE et les spectres de référence. Une correction des effets hors équilibre pourra être appliquée par la suite, en utilisant les antineutrinos produits à partir des concentrations des produits de fission calculées avec MURE présentées dans le paragraphe 3.3.1.

4.3.4. Mise à jour de la simulation du cœur du réacteur Osiris avec les données du CEA de Saclay

La mise à jour de la géométrie a été réalisée par un stagiaire de Master 1, Vincent Communeau [89]. Les changements ont pu être effectués sur la toute fin de ma thèse, grâce à des données fournies par le CEA – OSIRIS juste avant l'été. Nous avons pu obtenir des documents techniques confidentiels comportant des informations techniques sur les assemblages, les matériaux de structure des assemblages et du cœur, le réflecteur de Be, la composition des matériaux, la composition du combustible [90].

Les modifications principales de la géométrie ont concerné l'inclusion des plaques de rive qui sont borées et soumises au flux de neutrons dans le cœur, donc très importantes pour le comportement neutronique du cœur. Une autre amélioration a été de prendre en compte différents univers dans la simulation, afin de prendre en compte l'hétérogénéité des plans de chargement pour chaque cycle. On peut voir la nouvelle géométrie du cœur sur la figure 4.3.14.

V. Communeau a également modifié MURE afin que le suivi journalier des barres de contrôle soit possible en permettant au cours de l'évolution une modification de la cellule géométrique contenant les barres de contrôle.

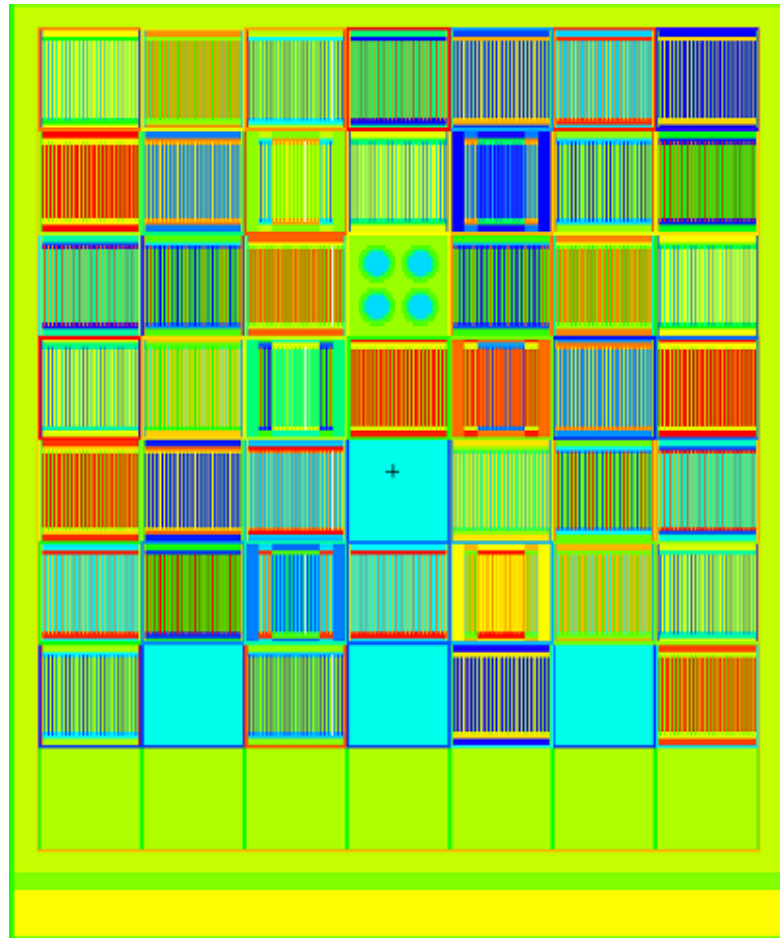


Fig. 4.3.14 : Profil du cœur du réacteur Osiris avec la modification de géométrie.

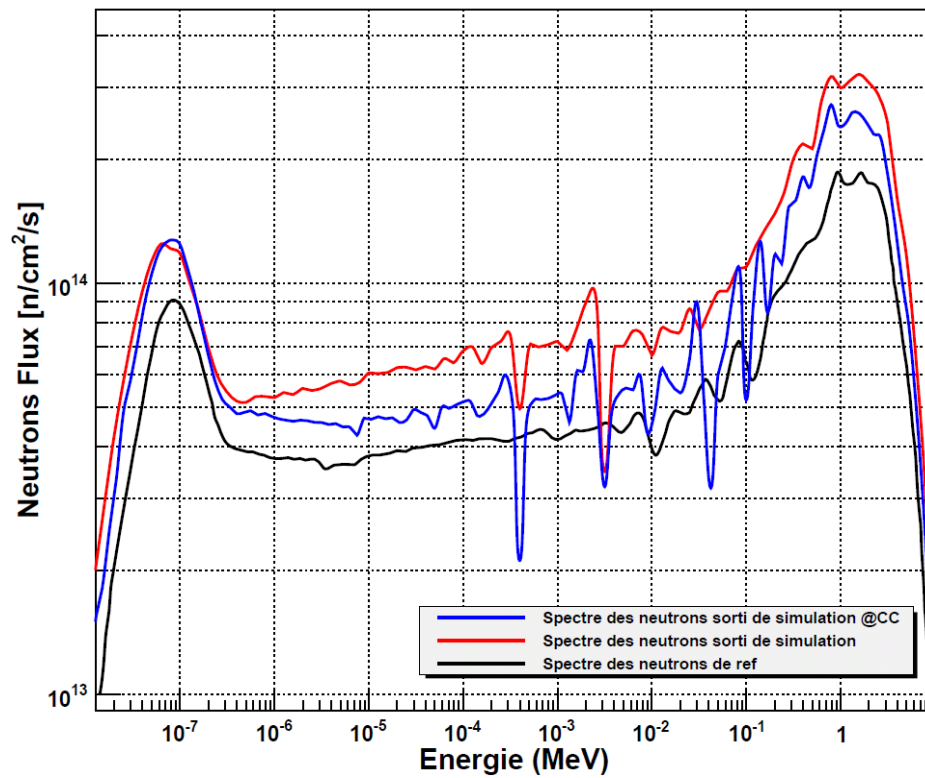


Fig. 4.3.15 : Comparaison du spectre des neutrons avec la modification de géométrie et géométrie homogène et le spectre de référence.

J'ai pu utiliser cette simulation détaillée pour recalculer le spectre en énergie des neutrons dans un four Chouca. Les conditions de la simulation étaient les suivantes : le combustible initial est NEUF, la composition du combustible de chaque assemblage est donnée par CEA et le flux de neutrons en résultant est pris au 5^{ème} jour de l'évolution. Il est tracé sur la figure 4.3.15 en bleu. On a normalisé le nouveau spectre en ajustant la bosse thermique à celle du spectre de F. Malouch. On voit que la forme du spectre en énergie est beaucoup plus proche de celui simulé avec le code APOLLO2. Le rapport entre la partie thermique et la partie rapide du spectre est maintenant de 2,06, en très bon accord avec le spectre issu de la référence [83].

4.3.5. Discussion sur les erreurs

4.3.5.1. Erreurs associées aux taux de fission

Reprenons la discussion entamée au chapitre précédent au paragraphe 7. Cette fois-ci nous ne comparons pas 2 scénarios entre eux, il n'y aura donc pas d'élimination des erreurs comme dans le cas de l'étude de scénario proliférant avec un réacteur CANDU. Les erreurs sur les taux de fission seront donc à minima celles calculées par A. Onillon pour l'expérience Double Chooz, rappelées dans le tableau 4.3.5 [26].

Isotope	²³⁵ U	²³⁹ Pu	²³⁸ U	²⁴¹ Pu
Erreur	3.3%	4%	6.5%	11%

Tableau 4.3.5 : Erreurs des taux de fission calculées dans le cas de la simulation des REP –N4 de la centrale de Chooz avec le code MURE.

De plus, la mesure de la puissance du réacteur OSIRIS est moins précise que celle d'une centrale de puissance telle que Chooz. Les informations préliminaires données par le CEA donnent une erreur de l'ordre de 3% sur la mesure de la puissance d'OSIRIS. Il faudra donc ré-estimer les erreurs sur les taux de fission en prenant en compte cette nouvelle erreur, puis propager ces erreurs sur le flux d'antineutrinos prédits. D'un autre côté, ici l'²³⁵U domine largement les taux de fission. C'est une chance pour une mesure de précision puisque c'est le taux de fission qui montre la plus faible erreur, son taux étant directement relié à la puissance thermique. Les écarts en inventaire de ce noyau trouvés entre notre simulation MURE détaillée et celle du CEA OSIRIS sont très faibles. On peut sans doute réduire ici l'erreur prise en compte pour la méthode de simulation par rapport au cas de Chooz. Par contre, une incertitude subsiste sur la composition initiale des éléments combustible rendant l'incertitude actuelle sur la concentration en ²³⁹Pu assez importante. Il faudra résoudre ce problème ou considérer une erreur plus grande sur le taux de fission du ²³⁹Pu, lequel contribue au maximum à hauteur de 7 % du nombre de fissions total.

4.4. Simulation du bruit de fond photonique produit par le réacteur OSIRIS pour l'expérience Nucifer

4.4.1. Coefficients d'atténuation des photons

Nous avons dans un premier temps cherché à estimer l'ordre de grandeur de l'atténuation des photons à travers la piscine et le mur de béton.

Energie (MeV)	Eau μ/p (cm ² /g)	Béton μ/p (cm ² /g)	Air μ/p (cm ² /g)
1,00E-03	4,078E+03	3,466E+03	3,606E+03
1,00E-02	5,329E+00	2,045E+01	5,120E+00
1,00E-01	1,707E-01	1,738E-01	1,541E-01
2,00E-01	1,370E-01	1,282E-01	1,233E-01
3,00E-01	1,186E-01	1,097E-01	1,067E-01
4,00E-01	1,061E-01	9,783E-02	9,549E-02
5,00E-01	9,687E-02	8,915E-02	8,712E-02
6,00E-01	8,956E-02	8,236E-02	8,055E-02
8,00E-01	7,865E-02	7,227E-02	7,074E-02
1,00E+00	7,072E-02	6,495E-02	6,358E-02
2,00E+00	4,942E-02	4,557E-02	4,447E-02
3,00E+00	3,969E-02	3,701E-02	3,581E-02
4,00E+00	3,403E-02	3,217E-02	3,079E-02
5,00E+00	3,031E-02	2,908E-02	2,751E-02
6,00E+00	2,770E-02	2,697E-02	2,522E-02
8,00E+00	2,429E-02	2,432E-02	2,225E-02

Données Osiris	Piscine/ Côté gauche du cœur		Demi- casemate
Matériau	Eau de la piscine	Béton	Air de la casemate
Epaisseur (cm)	292,279	200	50
Densité (g/cm ³)	0,8	2,35	0,001177
Masse surfacique (g/cm ²)	233,8232	470	0,05885

Facteur d'Atténuation des gammas I/I ₀			si il y a une atténuation totale I/I ₀ =0	
Energie (MeV)	Uniquement dans l'eau	Uniquement dans le béton	Uniquement dans l'air	Eau + Béton + Air
1.00E-03	0.00E+00	0.00E+00	6.871E-93	0.00E+00
1.00E-02	0.00E+00	0.00E+00	7.398E-01	0.00E+00
1.00E-01	4.63E-18	3.34E-36	9.910E-01	1.53E-53
2.00E-01	1.22E-14	6.79E-27	9.928E-01	8.26E-41
3.00E-01	9.04E-13	4.06E-23	9.937E-01	3.65E-35
4.00E-01	1.68E-11	1.07E-20	9.944E-01	1.80E-31
5.00E-01	1.46E-10	6.35E-19	9.949E-01	9.20E-29
6.00E-01	8.04E-10	1.54E-17	9.953E-01	1.24E-26
8.00E-01	1.03E-08	1.77E-15	9.958E-01	1.82E-23
1.00E+00	6.58E-08	5.53E-14	9.963E-01	3.63E-21
2.00E+00	9.58E-06	4.99E-10	9.974E-01	4.77E-15
3.00E+00	9.32E-05	2.79E-08	9.979E-01	2.60E-12
4.00E+00	3.50E-04	2.71E-07	9.982E-01	9.49E-11
5.00E+00	8.36E-04	1.16E-06	9.984E-01	9.67E-10
6.00E+00	1.54E-03	3.13E-06	9.985E-01	4.80E-09
8.00E+00	3.42E-03	1.09E-05	9.987E-01	3.70E-08

Tableau 4.4.1: Coefficient d'atténuation des gammas avec la géométrie de l'expérience Nucifer [91].

Compte-tenu des coefficients d'atténuation des photons dans l'eau, le béton et l'air que l'on trouve dans la littérature [92], nous nous attendons aux coefficients d'atténuations totaux calculés dans le tableau 4.3.5. Ces estimations montrent qu'il sera nécessaire d'utiliser des techniques de réduction de la variance dans le transport des photons. Elles vont nous aider à définir la discrétisation de la géométrie qui sera nécessaire pour optimiser le nombre de photons transportés.

4.4.2. Présentation de la simulation

La figure suivante présente la géométrie et donne le numéro des différentes cellules pour le béton (cellules 4,5,6,7,8, 9), la piscine (cellules 10,11,12,13,14,15,16) et la casemate Nucifer (cellule 2).

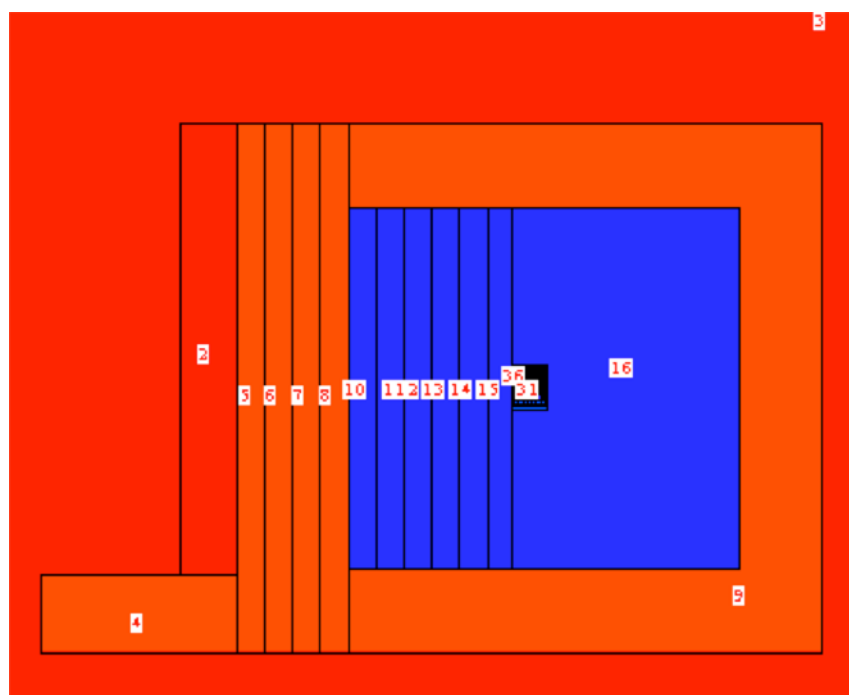


Fig. 4.4.1 : Discrétisation de la géométrie du réacteur Osiris pour la simulation des gammas dans la casemate.

Afin de transporter les photons émis par le cœur du réacteur OSIRIS vers la casemate avec assez de statistique, on discrétise la piscine et le mur de béton en plusieurs couches. On utilise, en outre, une technique de réduction de la variance [93]. Le cœur a une importance de 1. La cellule la plus proche du cœur a une importance de 2. Ensuite, cette valeur d'importance est doublée pour chaque cellule sur le chemin vers la casemate. Les autres cellules ont 0 comme valeur d'importance pour réduire le temps de calcul. Une première simulation est faite pour déterminer le nombre d'événements dans chaque cellule souhaitée afin de recalculer la valeur de l'importance comme présenté sur la figure 4.4.1. En effet, on doit pondérer les importances par le nombre de traces détectées dans chaque cellule.

Tracks	IMP	New IMP
300	1	1
200	2	$3 = (2/1) \times (300/200) \times 1$
100	4	$12 = (4/2) \times (200/100) \times 3$
25	8	$96 = (8/4) \times (100/25) \times 12$

Fig. 4.4.2: Principe du calcul de la valeur de l'importance dans les cellules [93].

Les conditions adoptées pour la simulation sont les suivantes :

- utilisation de la version MCNPX 2.7.d, publiée en octobre 2010
- utilisation d'une source propagée créée en mode kcode avec 50000 neutrons sources, 700 cycles actifs et 1000 cycles inactifs
- relecture de la source propagée puis utilisation de 50 000 particules sources, mode kcode (470 cycles actifs, 20 inactifs)
- traitement $S(\alpha, \beta)$ pour l'eau
- bibliothèques utilisées: endfb6 sauf endfb7 pour l'eau, et les bibliothèques photonucléaires el03, endf70u [94]

4.4.3. Options de physique de MCNPX

La simulation prise pour simulation de référence est une simulation de transport des neutrons et photons, en négligeant le transport et la création des électrons, et avec les options de physique par défaut de MCNPX. L'objectif est de réaliser la simulation la plus simple et "d'autoriser" un seul phénomène physique supplémentaire à la fois : réactions photonucléaires, bremsstrahlung, gammas retardés, diffusion Thomson pour en estimer la contribution et les conséquences sur les processus de production des neutrons et des gammas. De plus, des simulations Cœur (C) seul, Cœur plus Piscine (CP), Cœur-Piscine-Mur (CPM) ont été réalisées avec les mêmes options de physique afin d'étudier pour chacun des 3 éléments de la simulation : C, P, ou M la contribution des ces réactions. Les contributions et les conséquences des réactions de fluorescence, (n, xn) , des captures radiatives, de l'effet photoélectrique, de la production de paires et effet Compton ainsi que l'influence de différentes coupures en énergie sur l'énergie des gamma ont également été étudiés.

Nous commencerons ensuite par expliciter les options de physique permises par MCNPX. Voici la liste des interactions possibles selon la terminologie de MCNPX :

- la diffusion Compton ou Compton scattering, c'est à dire la diffusion d'un photon sur un électron libre. Cette diffusion est appelée 'incoherent scattering' ou 'Compton scattering on free electrons' dans MCNPX. Dans la matière, les électrons sont liés

mais si l'énergie du photon est plus importante que celle de l'énergie de liaison, cette dernière peut être négligée et les électrons peuvent être considérés comme libres ;

- la diffusion Thomson ou Thomson scattering, c'est à dire la diffusion d'un photon par un électron libre dans la limite classique ($h\nu \ll m_e c^2$) est aussi appelé coherent scattering dans MCNPX ;
- la diffusion Rayleigh ou Rayleigh scattering, c'est à dire la diffusion des photons par un atome en entier. Cette diffusion n'est apparemment prise en compte dans MCNPX que depuis la version 2.7.C ;
- la diffusion nucléaire Thomson ou encore Nuclear Thomson scattering, la diffusion Delbruck ou Delbruck scattering (diffusion élastique de photons par un noyau causé par création de paires électron-positron virtuelles) et la fluorescence par résonance nucléaire ne sont pas traités dans MCNPX.

Les options de physique choisies pour les photons (carte PHYS :P) sont les suivantes :

- EMPCF=100 MeV , pour tous les photons ayant une énergie inférieure à 100 MeV, MCNPX utilise des modèles de physique détaillés. Les processus suivants sont pris en compte: le processus de production de paires, l'effet photoélectrique plus la fluorescence sur les couches K et L, les diffusions Compton et Thomson.
- IDES=1: no Thick Target Bremsstrahlung (TTB), l'énergie des électrons est directement déposée pour les réactions de diffusion Compton et la création de paires. La création de gammas provenant du Bremsstrahlung, des électrons provenant de ces processus n'est pas possible. Pour la production de paires, 2 photons de 511 keV sont créés et transportés.
- NOCOH=0, la diffusion Thomson est prise en compte, c'est à dire la diffusion d'un photon par un électron libre dans la limite classique ($h\nu \ll m_e c^2$).
- PNB=0, les réactions photonucléaires ne sont pas prises en compte, notamment la production des neutrons via l'absorption de photons.
- PDB=0 prise en compte de l'élargissement Doppler.
- DGB=0, les photons retardés ne sont pas pris en compte.

4.4.4. Tests réalisés et études des contributions des différents processus au flux des photons produits par le réacteur OSIRIS

Afin de vérifier la prise en compte de ces phénomènes, nous avons également réalisé des simulations dans lesquelles nous avons ajouté des tallies pour les flux de neutrons, les taux de captures radiatives et les flux de photons.

4.4.4.1. Coefficients d'atténuation des photons

Nous avons utilisé ces calculs pour vérifier l'ordre de grandeur des résultats que nous avons obtenus avec nos simulations réalisées avec MURE. Par exemple, nous avons calculé les rapports entre les flux de gammas obtenus dans les différentes couches de la piscine et du mur de béton :

Piscine 14/15	1,37E-01
Piscine 13/14	1,06E-01
Piscine 12/13	1,23E-01
Piscine 11/12	1,46E-01
Piscine 10/11	1,73E-01
Béton 7/8	3,82E-02
Béton 6/7	4,06E-02
Béton 5/6	4,17E-02

Tableau 4.4.2: Rapport de flux des gammas dans différentes couches de la piscine et du mur de béton.

En parallèle, nous utilisons les coefficients d'atténuation μ/ρ trouvés dans la littérature [95] pour estimer le coefficient d'atténuation des gammas dans une épaisseur de 50cm d'eau ou de béton. Cette épaisseur de 50 cm correspond à l'épaisseur choisie pour une couche d'eau ou de béton dans la simulation. Il est important de souligner que les coefficients d'atténuation trouvés dans la littérature pour l'eau et le béton correspondent à des matériaux avec une densité et une composition qui sont un peu différentes des valeurs de notre simulation. On obtient les valeurs suivantes :

E MeV	I/I ₀ Piscine 50	I/I ₀ Béton 50
1,00E-03	0,00E+00	0
1,00E-02	2,66556E-93	0
1,00E+00	5,91E-02	4,85E-04
2,00E+00	1,39E-01	4,73E-03
3,00E+00	2,04E-01	1,29E-02
4,00E+00	2,56E-01	2,28E-02
5,00E+00	2,97E-01	3,28E-02
6,00E+00	3,30E-01	4,20E-02
8,00E+00	3,78E-01	5,74E-02

Tableau 4.4.3 : Coefficient d'atténuation dans une couche de 50 cm de la piscine et du mur de béton.

Ces valeurs dépendent de l'énergie alors que les résultats obtenus à partir de la simulation représente une valeur moyenne pour l'ensemble du spectre en énergie des gamma. Cependant on voit que l'ordre de grandeur des résultats est le même entre la simulation et le calcul.

4.4.4.2. Production des paires

Compte-tenu des coefficients d'atténuation des neutrons trouvés dans la littérature, nous nous attendons à voir peu ou pas de neutrons traverser la piscine et le mur de béton.

D'après la littérature, les trois principales réactions sont la création de paires, l'effet Compton et la diffusion cohérente qui sont en fonction du nombre de charge Z, [12], [96], [97].

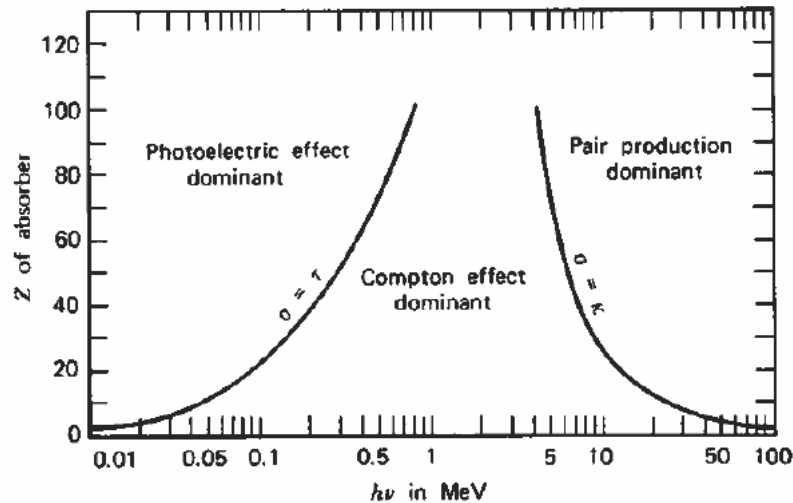


Figure 2.20 The relative importance of the three major types of gamma-ray interaction. The lines show the values of Z and $h\nu$ for which the two neighboring effects are just equal. (From *The Atomic Nucleus* by R. D. Evans. Copyright 1955 by the McGraw-Hill Book Company. Used with permission.)

Fig. 4.4.3 Importance relative parmi les 3 types majeurs d'interaction des gammas [98]

La production de paires (PP) commence pour des matériaux de Z élevé pour des énergies supérieures au MeV. En mettant des coupures de plus en plus hautes sur l'énergie des photons incidents, c'est à dire en coupant les photons de basse énergie, on voit que la contribution relative des réactions de production de paires augmente, ce qui est ce qui était attendu.

Valeur du CUT (MeV)	%PP sur les réactions de pertes de gamma (%)
0	1
2	8
4	16
6	21
8	24

Tableau 4.4.4 : Pourcentage de productions de paires contribuant aux pertes des gammas en fonction de la coupure en énergie.

4.4.4.3. Atténuation des neutrons et captures radiatives

Compte-tenu des coefficients d'atténuation des neutrons trouvés dans la littérature, nous nous attendons à voir peu voire pas de neutrons traverser la piscine et le mur de béton.

	n/cm2/ns(MCNP)	erreur(%)	n/cm2/s
Piscine1(292.3cm)	0	0	0,00000E+00
Piscine2(242.3cm)	9,57866E-16	100	4,07826E+03
Piscine3(192.3cm)	2,10196E-15	100	8,94942E+03
Piscine4(142.3cm)	2,26211E-13	17,69	9,63128E+05
Piscine5(92.3cm)	8,68293E-11	1,24	3,69689E+08
Piscine6 (42.3cm)	1,03627E-07	0,08	4,41208E+11

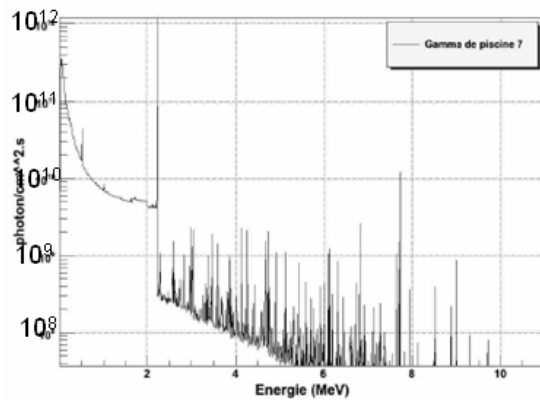
Tableau 4.4.5 : Simulation du flux de neutrons observé en fonction de la distance par rapport au cœur dans la piscine.

Dans la première colonne du tableau 4.4.5, on trouve le nombre de neutrons par cm^2 par neutron source, converti en nombre de neutrons par cm^2 et par seconde dans la dernière colonne. L'erreur indiquée est l'erreur statistique donnée par MCNP. Le tableau 4.3.8 illustre bien l'évolution du flux de neutrons provenant du cœur en fonction de l'épaisseur d'eau traversée, puis de béton. Il est important de noter que la simulation utilisée pour obtenir ce tableau n'avait que 20000 neutrons source contre 50000 dans les simulations présentées plus bas pour obtenir les spectres en énergie des photons.

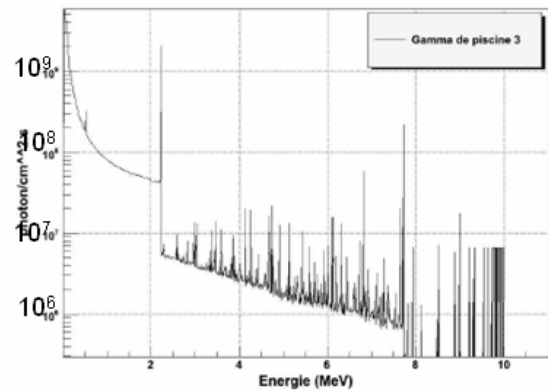
En ce qui concerne les captures radiatives des neutrons, d'après la référence [96], on s'attend à voir des captures radiatives des neutrons sur l'hydrogène de l'eau de la piscine, qui donne lieu à l'émission d'une raie de 2.25 MeV, mais pas à la présence de captures radiatives sur l'oxygène de l'eau ni dans l'air. On pourra voir des photons issus des captures radiatives sur les éléments composant le béton si le flux de neutrons est suffisamment important au niveau du mur de béton

On peut aussi avoir des diffusions inélastiques des neutrons produisant des gammas ou des réactions (n,γ) . Ces gamma pouvant à leur tour subir des réactions (γ,n) .

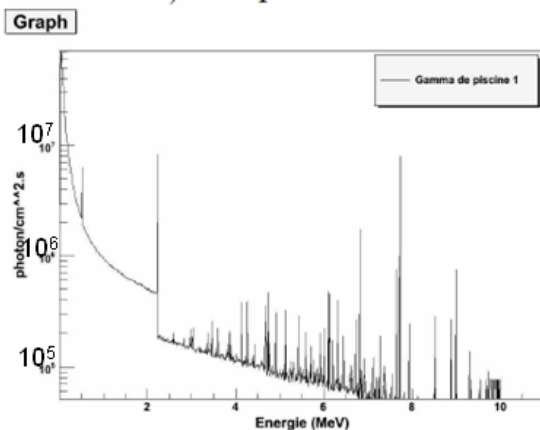
On peut voir sur la figure 4.4.4 l'évolution de la forme du spectre en énergie des photons émis en fonction de leur distance au cœur, dans la piscine et finalement dans la première couche du mur de béton. On voit très bien la raie provenant de la capture radiative des neutrons sur l'hydrogène de l'eau à 2.2 MeV. Cette raie disparaît cependant lors de la traversée du mur de béton, ce qui est cohérent avec l'évolution du flux de neutrons présentée dans le tableau 4.4.5. Les neutrons mesurés dans la casemate OPERA à l'emplacement de Nucifer ne proviennent donc pas directement du cœur du réacteur. Ils pourraient provenir des réactions photonucléaires (γ, n) dans le béton. Cette hypothèse sera testée dans la suite du chapitre.



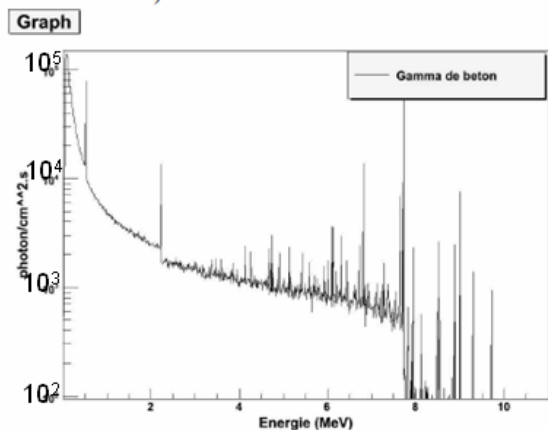
a) eau proche coeur



b) eau 75 cm du coeur



c) eau 1,75m du coeur



d) beton

Fig. 4.4.4 : Evolution du spectre en énergie des photons émis en fonction de leur distance au cœur du réacteur.

4.4.4.4. Réactions de photofission

Il n'y a pas de réactions de photofission d'après les résultats des simulations.

4.4.4.5. Diffusion Thomson

On s'intéresse maintenant à la contribution de la diffusion Thomson (Thomson ou coherent scattering). On n'observe pas de différence notable sur les taux absolus de neutrons et photons ou tallies.

4.4.4.6. Réactions (n,xn)

Les réactions (n,xn) représentent 0.2% des traces neutrons. C'est une contribution constante quelle que soient les options de simulation (c'est logique puisqu'on joue pas mal sur les options des gammas).

4.4.4.7. Réactions photonucléaires

On compare également 2 simulations en mode de transport des neutrons et des photons en activant ou pas la production de réactions photonucléaires, PNB 0/-1. Les réactions créant des neutrons (gamma, n) contribuent pour 1.1×10^{-4} % des traces neutrons. A partir de simulations du cœur seul, du cœur et de la piscine puis du cœur avec piscine et mure de béton, on peut comprendre où se font les réactions photonucléaires en majorité. Les simulations sont ici réalisées en mode np (transport des neutrons et photons) avec les réactions photonucléaires mais sans l'option TTB, sans gammas retardés et en prenant en compte l'élargissement Doppler. 70% des traces viennent de réactions (gamma, n) dans le mur de béton, 3% dans la piscine et 27% dans le cœur, soit une contribution majoritaire du mur de béton, ce qui expliquerait peut-être le bruit neutron observé au niveau de la casemate OPERA.

Les énergies seuil des réactions photonucléaires sur les principaux noyaux composant les matériaux dans un réacteur nucléaire sont présentées dans le tableau 4.4.6. Les seuils des réactions qui sont inférieurs à 8 MeV sont surlignés en bleu. Au-delà de cette énergie le flux de photons chute fortement, mais il en subsiste encore. Cette valeur est prise à titre indicatif.

Elements	Abundance %	γ, n	γ, p	γ, t	$\gamma, ^3\text{He}$	γ, α	$\gamma, ^2n$	γ, np	$\gamma, ^2p$	$\gamma, ^3n$
² H	0.01	2.22	-	-	-	-	-	-	-	-
¹² C	98.89	18.72	15.96	27.37	26.28	7.37	31.84	27.41	27.19	53.13
¹⁶ O	99.76	15.66	12.13	25.03	22.79	7.16	28.89	22.96	22.34	52.06
²³ Na	100.	12.42	8.79	17.43	24.45	10.47	23.49	19.16	24.06	40.59
²⁴ Mg	78.99	16.53	11.69	26.69	23.13	9.31	29.68	24.11	20.48	49.06
²⁷ Al	100.	13.06	8.27	18.21	23.71	10.09	24.42	19.36	22.41	41.36
²⁸ Si	92.23	17.18	11.58	27.53	23.23	9.98	30.49	24.64	19.86	49.53
⁴⁰ K	0.01	7.80	7.58	17.54	16.70	6.44	20.88	14.18	18.31	32.95
⁴⁰ Ca	96.94	15.94	8.33	25.00	18.83	7.04	28.93	21.40	14.71	45.90
⁵⁶ Fe	91.72	11.20	10.18	20.87	20.25	7.61	20.50	20.41	18.25	33.87
²³⁵ U	0.72	5.30	6.71	9.96	9.46	-4.68	12.14	11.93	12.39	17.89
²³⁸ U	99.27	6.15	7.62	9.97	11.88	-4.27	11.28	13.39	13.01	17.82
²³⁹ Pu	0.00	5.65	6.16	9.74	8.79	-5.24	12.65	11.64	11.38	18.51
²⁴¹ Pu	0.00	5.24	6.66	9.45	9.29	-5.14	11.78	11.72	12.20	17.42

Tableau 4.4.6 : Seuil des principales réactions photonucléaires sur des éléments que l'on trouve communément dans un réacteur nucléaire et son enceinte [99].

Au niveau du mur de béton, pour des gammas d'énergie inférieure à 8 MeV, seules les réactions (gamma, n) sur le ⁴⁰K peuvent contribuer (section efficace 20mb). Au niveau de la piscine, seules les réactions (gamma, n) sur le deutérium (2,5mb) ont un seuil inférieur à 8 MeV. Si l'on considère que l'énergie des photons peut atteindre 12 MeV, alors des réactions photonucléaires sur le ²³Na et le ⁵⁶Fe contenus dans le mur de béton peuvent libérer des neutrons.

Dans notre simulation, le ⁴⁰K ne représente que 1,3% des matériaux composant le mur. Une simulation avec un mur de béton ne comportant pas de ⁴⁰K est réalisée pour estimer sa contribution. Cette simulation est une simulation en mode np, (options phys: 1 0 -1 0 0), réactions photonucléaires, sans l'option TTB, sans gamma retardés, avec élargissement Doppler, comprenant le cœur, la piscine et le mur de béton. Les résultats sont ensuite comparés avec la même simulation avec du ⁴⁰K. La densité du béton a été gardée identique dans les deux cas. Dans le cas de la simulation sans ⁴⁰K, les proportions ont été renormalisées automatiquement par MCNP pour que la somme fasse 1. Le nombre total des traces est quasiment identique entre les 2 simulations.

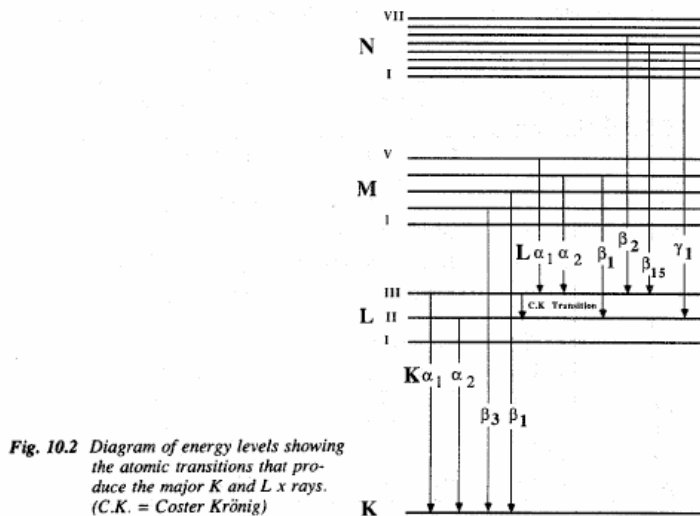


Fig. 4.4.6 : Illustration des transitions entre les niveaux atomiques des électrons, à l'origine de l'émission de rayons X (fluorescence) [98].

Diverses interactions ionisent ou éjectent un électron d'un atome. Toutes les particules chargées énergétiques interagissent avec les électrons lorsqu'elles traversent la matière. Les rayons X et photons gamma interagissent avec les électrons atomiques. Les interactions nucléaires comme la conversion interne ou la capture électronique peuvent l'ionisation des atomes. Quand un électron quitte un atome, l'atome est dans un état excité d'énergie B_i , laissant une vacance sur le niveau électronique i . Cette vacance peut être remplie par un électron moins lié provenant d'une orbitale plus extérieure, le niveau j . Le changement de niveau d'énergie est accompagné de l'émission d'un rayon X d'énergie $B_i - B_j$ ou par l'émission d'un électron Auger d'énergie $B_i - 2B_j$. Dans ce dernier cas, l'atome transfère son excès d'énergie à un électron d'une orbitale externe. La fraction de vacances dans le niveau i qui donnent une émission de photons X est définie comme le taux de production de la fluorescence w_i . La figure 4.4.7 montre la variation de ce taux pour les photons provenant des couches K, L et M en fonction du numéro atomique Z . On qualifie les raies de fluorescence par une lettre romaine désignant la couche vers laquelle l'électron bouge et une lettre grecque qui désigne le niveau d'origine.

Dans le cas de notre expérience, l'éjection des électrons peut être induite par l'effet photoélectrique, l'interaction des électrons de décroissance bêta ou de conversion interne. Dans l'Uranium et le Plutonium, la plupart des rayons X proviennent de l'effet photoélectrique en raison des grandes sections efficaces d'absorption photoélectriques de ces éléments pour les gammas du combustible. La figure 4.4.8 montre les rayons X de l'Uranium. La figure 4.4.9 est obtenue avec notre simulation de cœur seul, et montre exactement les mêmes raies, provenant de la fluorescence de l'Uranium.

Cette contribution disparaît avec l'application d'une coupure en énergie sur l'énergie des gammas à 2 MeV. Lorsque l'on utilise un modèle de physique détaillé pour les photons, ce qui est notre cas jusqu'à 100 MeV (valeur par défaut), l'effet photoélectrique est traité comme une absorption analogue avec possible fluorescence des couches K et L ("analog absorption plus possible K and L shell fluorescence"). Ce qui explique aussi la contribution

importante des traces due à la fluorescence dans notre simulation (puisque c'est une sous-réaction au moment de l'effet photoélectrique), comme détaillé par la suite.

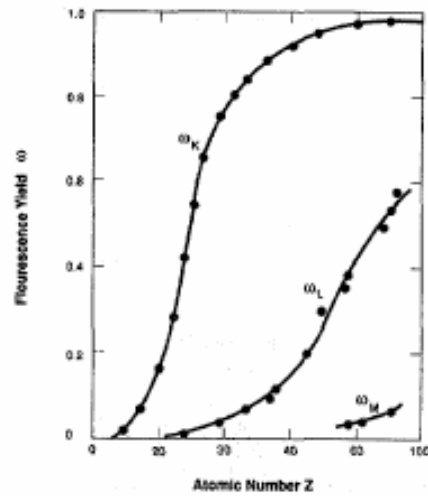


Fig. 4.4.7: Taux de production de la fluorescence pour les photons X provenant des couches K, L et M en fonction du numéro atomique Z [98].

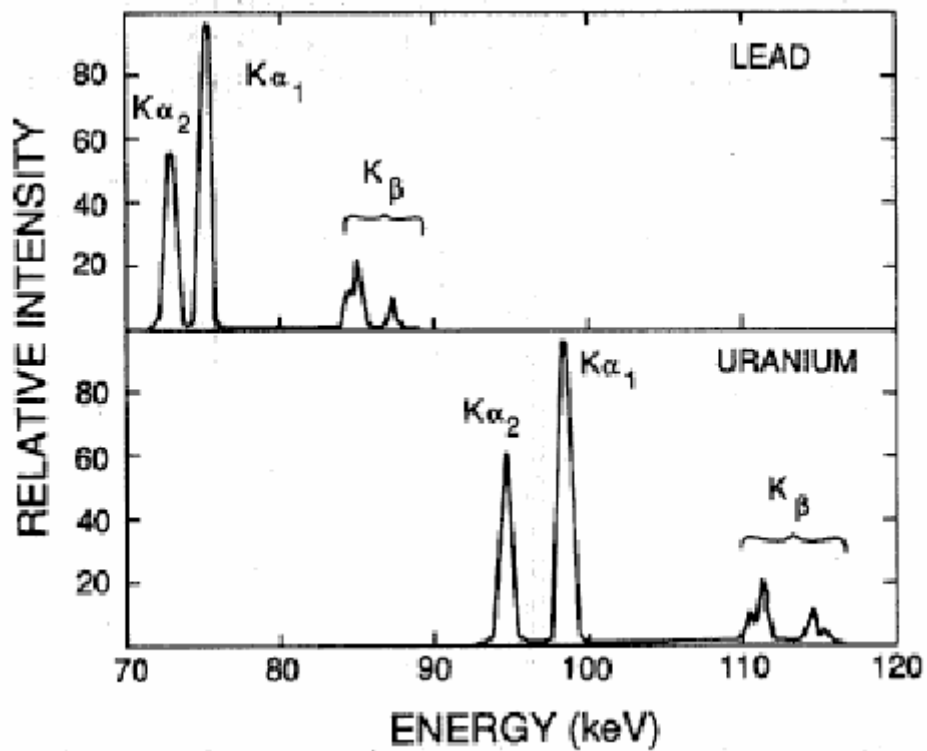


Fig. 4.4.8 : Caractéristique de fluorescence du plomb et de l'uranium [98].

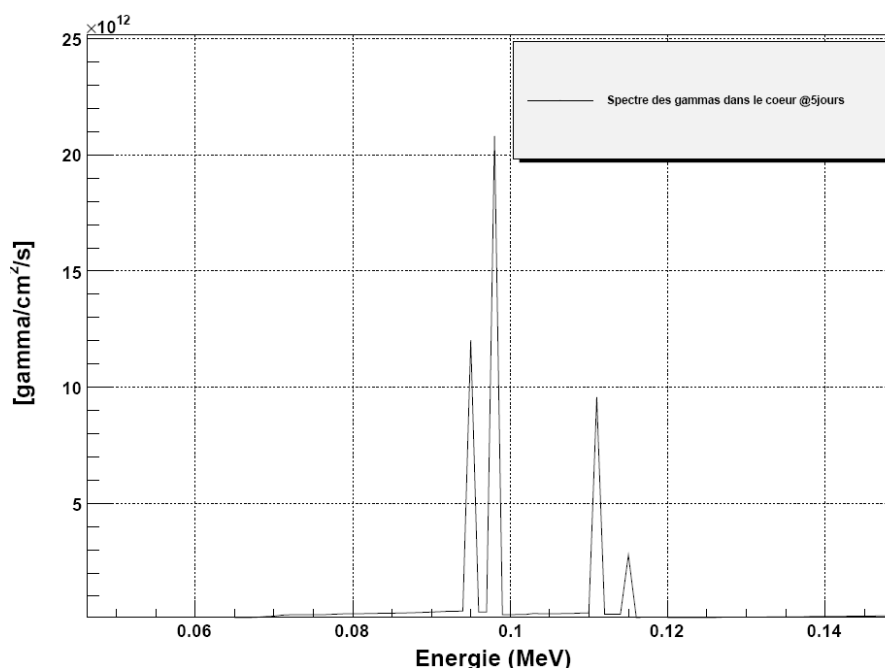


Fig. 4.4.9 : Raies de fluorescence K_{α} et K_{β} dans la simulation du cœur du réacteur Osiris.

L'explication est qu'avec la coupure à 2 MeV, on coupe l'effet photoélectrique et par conséquent la possibilité de la fluorescence.

Ces réactions produisent des photons de basse énergie (des X), MCNPX ne prend en compte que la fluorescence atomique sur les couches K et L.

L'effet photoélectrique est dominant pour les matériaux de Z élevé: une hypothèse possible est qu'il ait lieu principalement dans le combustible. Pour le savoir, on réalise comme précédemment 3 simulations : l'une avec le cœur seul (C), une autre avec cœur et piscine (CP) et la dernière avec la géométrie complète (CPM).

	Nombre de traces	
CPM	44608435	
CP	44602146	
C	38793912	
Différence	Nombre de traces	Contribution (%)
Mur	6289	0.01
Piscine	5808234	13.02
Cœur	38793912	86.97
Somme	44608435	

Tableau 4.4.8 : Contributions du cœur, de la piscine et du mur de béton à la fluorescence.

Le tableau 4.4.8 montre que le cœur est le principal contributeur à la fluorescence ce qui est bien ce qu'on attendait puisque c'est là que l'on trouve des matériaux de Z élevé.

Les gammas créés lors des réactions de fluorescence 1^{ère} contribuent respectivement entre 26% et 30% des traces gammas pour l'ensemble des cas étudiés. On augmente ce pourcentage jusqu'à 36% en prenant en compte la possibilité d'émettre des gammas retardés

(DGB=-101), ce qui semble logique. Les gammas créés lors des réactions de fluorescence 2^{nde} contribuent environ à 5,3% des traces gammas et à 6,7% en incluant la possibilité d'émettre des gammas retardés. Si on additionne les deux types de fluorescences, on arrive à une contribution totale de 40%.

4.4.4.9. Contributions des photons retardés

Les photons retardés proviennent des désexcitations des noyaux fils par décroissance bêta des produits de fission. Ces photons sont des « gammas ». Les gammas retardés de basse énergie vont interagir par effet photoélectrique, il y aura donc possibilité de fluorescence ensuite. Nous avons utilisé ici la simulation du cœur du réacteur Osiris seul. Aucun traitement thermique de l'eau $S(\alpha,\beta)$ et l'option SetMultigroupDecade(10) ne sont pris en compte. 150 cycles actifs et 100 cycles inactifs sont utilisés avec une source propagée de 10000 particules source par cycle. Le cœur est chargé avec du combustible neuf et le spectre est calculé au 5^{ème} jour de l'évolution.

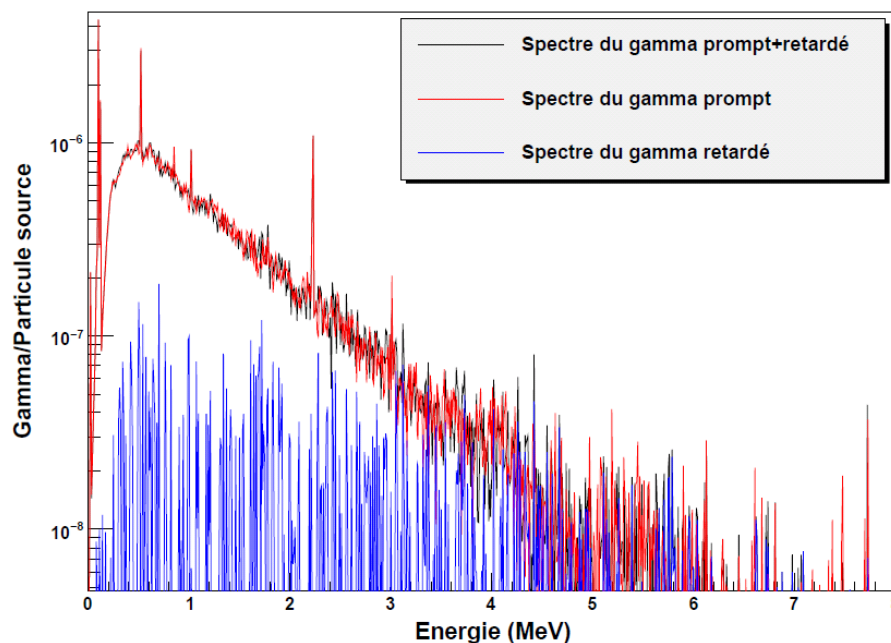


Fig. 4.4.10 : Présentation des types de spectre des gammas dans le cœur du réacteur Osiris : Gammas prompts, gamma retardés et gammas prompts + gammas retardés.

La figure 4.4.10 présente la contribution des photons retardés obtenue en soustrayant la contribution des photons prompts de fission au spectre total des photons. La statistique est sans doute trop faible pour en tirer une forme générique. La contribution des photons retardés multiplie le nombre de traces des photons par 5. Cette contribution est l'une des plus importantes et ne peut pas être négligée. Cependant le suivi des photons retardés en mode continu en énergie ne sera pas possible compte-tenu des temps de calcul requis. Un suivi des photons retardés en mode multigroupe sera suffisant pour obtenir une forme correcte du spectre en énergie des photons parvenant dans la casemate OPERA ou sera installé le détecteur Nucifer.

4.4.4.10. Rayonnement de freinage (Bremsstrahlung)

Les particules chargées décélèrent de façon continue quand ils se déplacent dans la matière. En décélérant, elles émettent des photons au spectre en énergie continu appelé rayonnement de freinage ou encore Bremsstrahlung. Les électrons provenant des décroissances nucléaires émettent souvent un rayonnement de freinage. Les électrons de conversion interne peuvent aussi contribuer aux photons de rayonnement de freinage. Les raies de photons provenant des décroissances des noyaux excités sont alors superposées à un fond continu de photons de rayonnement de freinage.

Pour simuler les photons créés par Bremsstrahlung, il faut mettre l'option IDES à 0. Ceci n'augmente pas le temps de calcul. Si on met l'option IDES=0, (option Thick Target Bremsstrahlung), des électrons sont générés dans la direction du photon incident et sont annihilés immédiatement après la génération des photons de Bremsstrahlung. L'effet photoélectrique, la production de paires et la diffusion incohérente mettent en jeu des électrons. Donc même si on est en mode n p; il est nécessaire de voir si une fraction importante de ces électrons est convertie en photons de Bremsstrahlung.

Sur les traces de photons créés, le rayonnement de freinage représente une contribution de 20%. La fraction de l'énergie des électrons convertie en photons de Bremsstrahlung augmente avec l'énergie de l'électron incident et est plus importante pour des matériaux absorbants de haut numéro atomique. Le tableau 4.4.9 présente les contributions du rayonnement de freinage dans le cœur, la piscine et la casemate OPERA

	Nombre de traces	Contribution (%)
CPM	39481257	
CP	38562153	97.67
C	28070705	71.1
Différence	Nombre de traces	Contribution (%)
Mur	919104	2.3
Piscine	10491448	26.6
Cœur	28070705	71.1
Somme	39481257	

Tableau 4.4.9 : Contributions du rayonnement de freinage aux traces des photons pour les simulations avec le cœur seul (C), le cœur et la piscine (CP) et la géométrie complète (CPM).

On voit sur le tableau 4.4.9 que la contribution majoritaire aux photons de Bremsstrahlung provient du cœur du réacteur et que la contribution dans la casemate, 2% est négligeable. La figure 4.4.11 présente la forme du spectre en énergie des photons de Bremsstrahlung du cœur du réacteur Osiris avec la simulation du cœur seule.

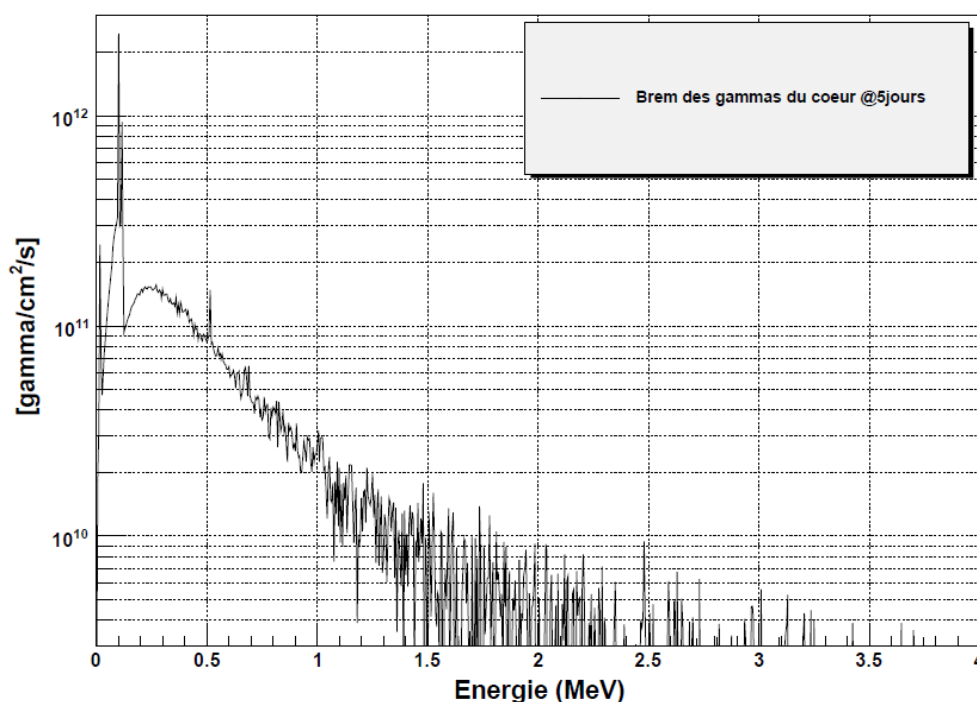


Fig. 4.4.11: Spectre de Bremsstrahlung des gammas dans le cœur du réacteur Osiris à 5 jours.

Nous l'avons obtenue par soustraction d'une simulation sans l'option TTB à une simulation incluant cette option. L'allure est conforme à celle que l'on peut trouver dans la littérature [100], [101], [102]. L'option TTB semble donc bien adaptée pour simuler le Bremsstrahlung en mode NP.

4.4.4.11. Temps de calcul requis pour les simulations

En mode de transport des neutrons et photons, il faut compter entre 22 et 24h pour les options de physique par défaut. Une coupure en énergie à 2 MeV permet de réduire le temps de calcul à 15h. L'emploi d'une telle coupure pourra s'avérer utile afin de maximiser la statistique sur la partie à plus haute énergie du spectre des photons, puisque les photons de basse énergie ne franchiront pas le blindage de Pb place autour de la cible de Nucifer. La prise en compte ou pas des réactions photonucléaires, diffusion Thomson, approximation TTB n'augmentent en aucune manière significative le temps de calcul (+2h). Ces options peuvent donc être mises par défaut. Par contre l'inclusion des gammas retardés en mode multigroupe (-101) augmente de 50% le temps de calcul (1.5 jour). L'inclusion des gammas retardés en mode lignes individuels fait exploser le temps de calcul: pour les mêmes conditions de simulation, 20 cycles du mode kcode sont réalisés en 6 jours. Nous devons donc nous contenter d'une prédiction en mode multigroupe du spectre en énergie des photons produits par le réacteur dans la casemate OPERA où est installé le détecteur Nucifer. Ceci n'est pas gênant compte-tenu de la résolution en énergie de la cible de Nucifer qui ne permettrait pas de faire de la spectroscopie fine.

Les problèmes de temps de calcul vont s'avérer rédhibitoires si l'on souhaite réaliser un transport des particules en mode neutron, photon et électron. Nous avons réalisé des tests pour estimer si le mode de transport des électrons était indispensable pour une bonne estimation du

spectre en énergie des gammas produits par le réacteur OSIRIS. Mais les temps de calcul ne permettent pas d'étudier le spectre en énergie avec cette option. Seul le flux total de photons transmis est étudié dans ce cas. La décomposition des différentes contributions des processus ci-dessus et en particulier le spectre de Bremsstrahlung obtenu avec l'option TTB en mode np, faite pour éviter le mode npe, semblent montrer que ces options donnent des résultats corrects et suffisants pour l'estimation requise pour l'expérience Nucifer.

4.4.4.12. Prédiction du spectre en énergie des photons dans la casemate de Nucifer

Dans cette partie, je présente les résultats obtenus avec la simulation MCNPX du réacteur Osiris. Dans cette simulation, le cœur du réacteur Osiris est scindé en 7 parties (7 univers) et l'on a considéré une composition du combustible à l'équilibre calculée avec la simulation du cœur avec rechargement (composition du combustible après 2 cycles de rechargement complet du cœur, environ 260 jours).

IDES	0
NOCOH	0
PNB	-1
PDB	0

Tableau 4.4.10 : Options physiques de carte PHYS:P utilisée pour la simulation des spectres des gammas dans la casemate.

Comme l'explication dans le paragraphe au-dessus, avec les tests, je fais les simulations finales pour le transport des gammas provenant du cœur vers la casemate en tenant compte les gammas en provenant du Bremsstrahlung, la diffusion d'un photon par un électron libre dans la limite classique, les réaction photonucléaires et l'élargissement Doppler.

Je vous présente les résultats en superposant le spectre des gammas avec et sans coupure à 2 MeV à différents pas d'évolution : 1 heure, 5 heures, 1 jour, 10 jours et 20 jours. Sur ces spectres une des raies les plus importantes est celle provenant de l' ^{27}Al à 7.7MeV. On voit également des raies du ^9Be , provenant du mur réflecteur du réacteur. Nous n'avons pas réalisé de travail d'identification des raies complet.

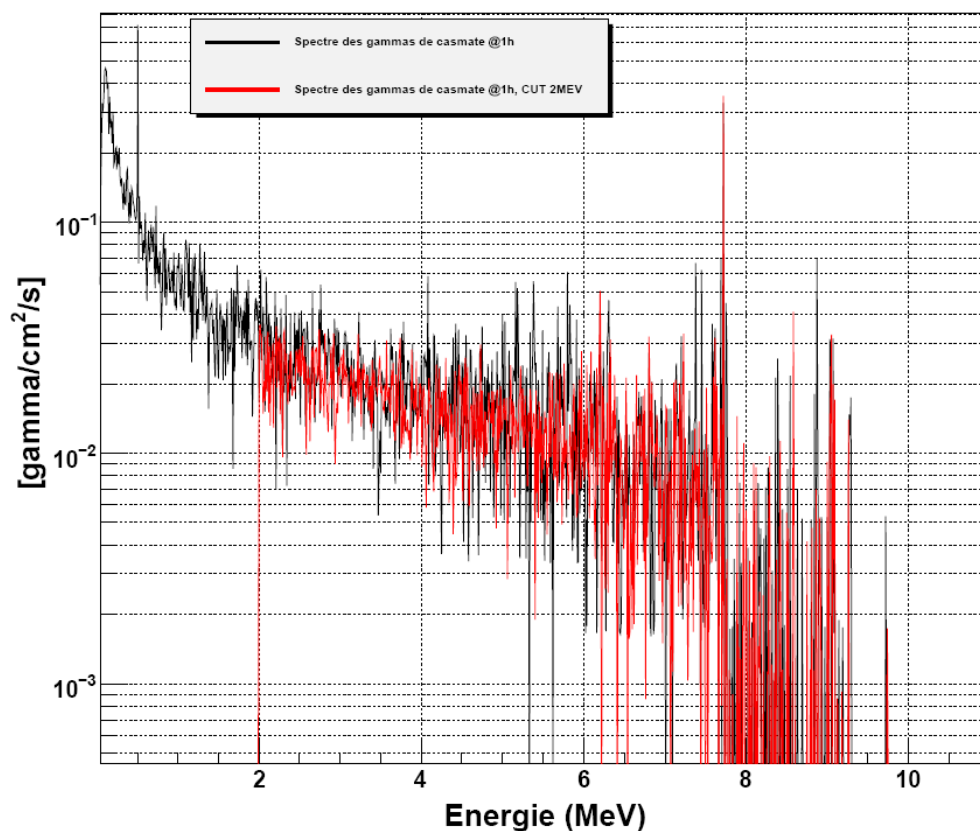


Fig. 4.4.12 : Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 1heure.

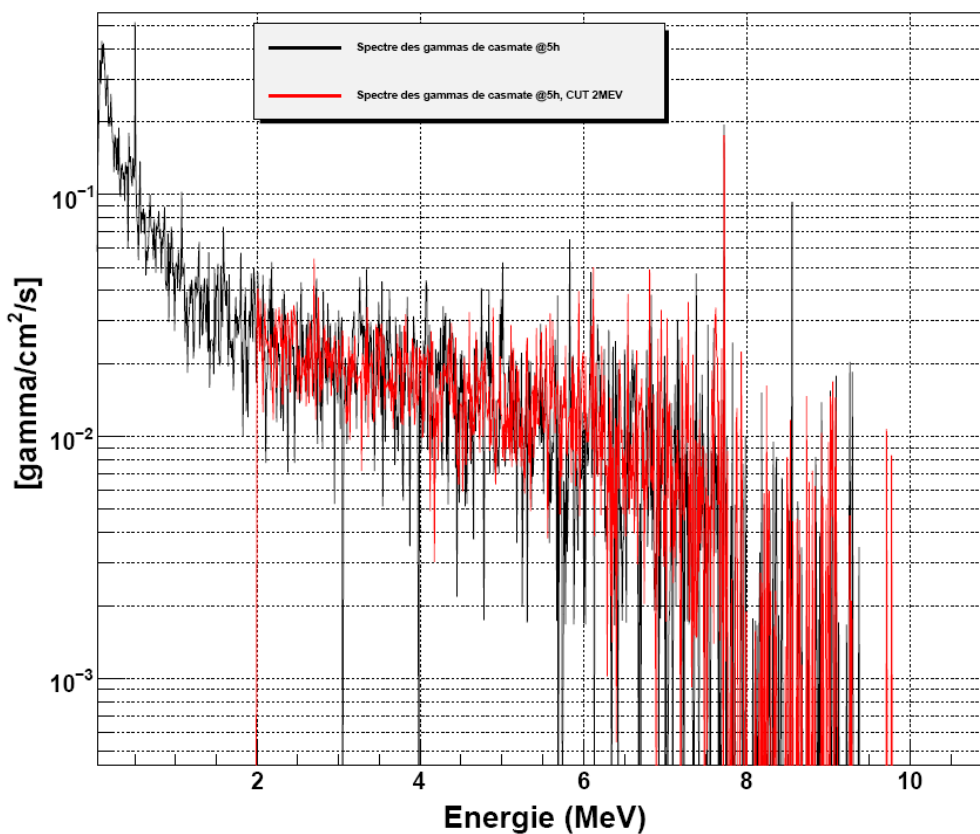


Fig. 4.4.13 : Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 5 heures.

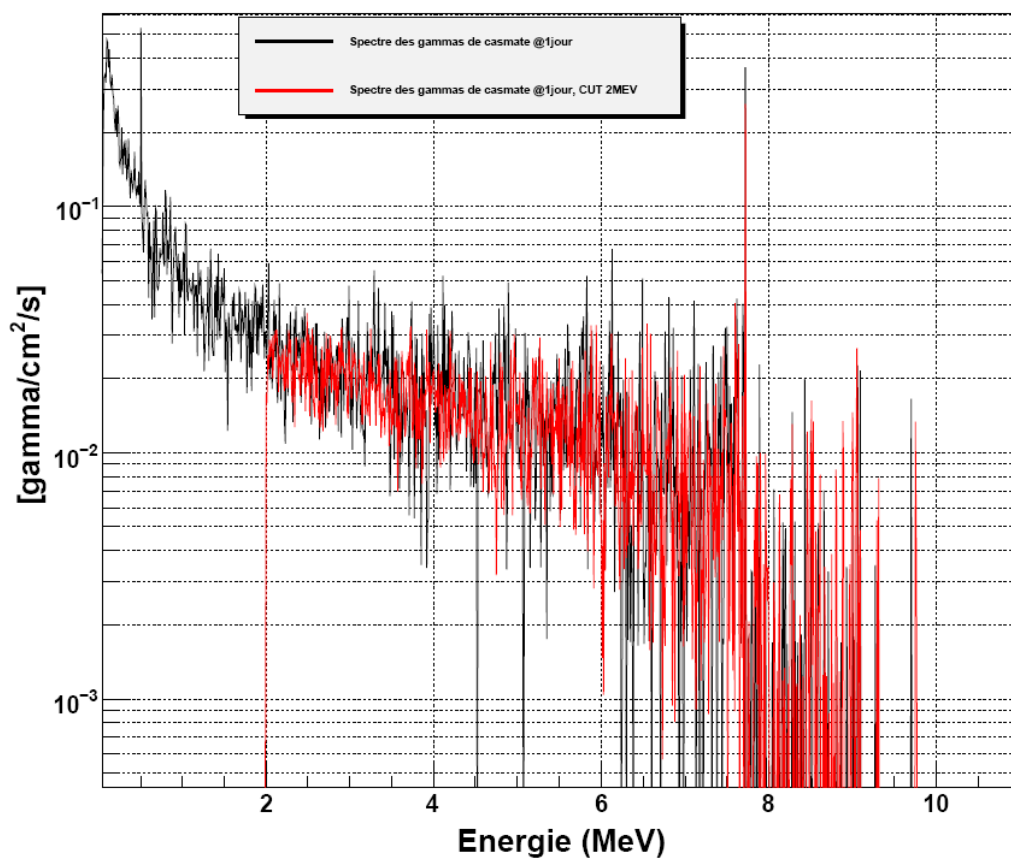


Fig. 4.4.14 : Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 1 jour.

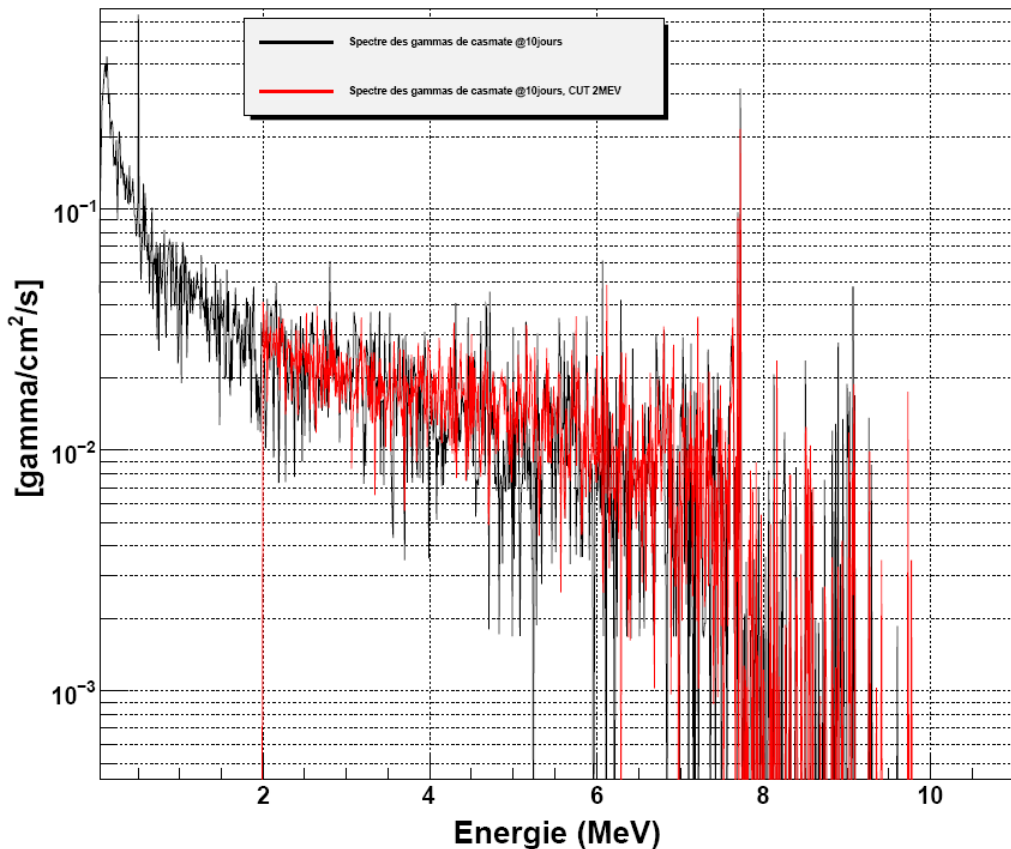


Fig. 4.4.15: Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 10 jours.

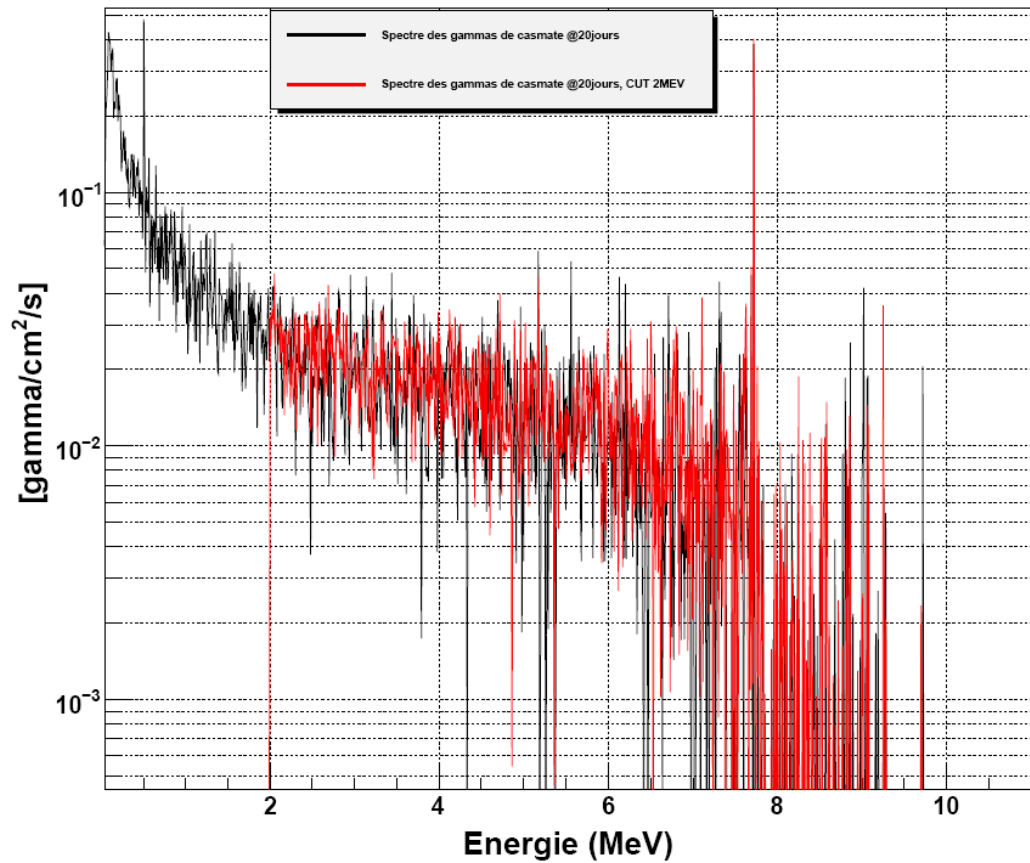


Fig. 4.4.16 : Spectre des gammas dans la casemate avec (en rouge) et sans (en noir) coupure à 2MeV à 20 jours.

La figure suivante montre la différence entre les flux de photons pour un cœur à l'équilibre entre les simulations avec et sans coupure à 2 MeV. Cette différence est de l'ordre de 2.5 fois. 40% des photons parvenant à la casemate sont donc d'énergie inférieure à 2 MeV. Calculons le flux total des photons qui traversent la surface d'un détecteur tel que Nucifer : pour une surface de 10 m² environ, on trouve 2.5MHz.

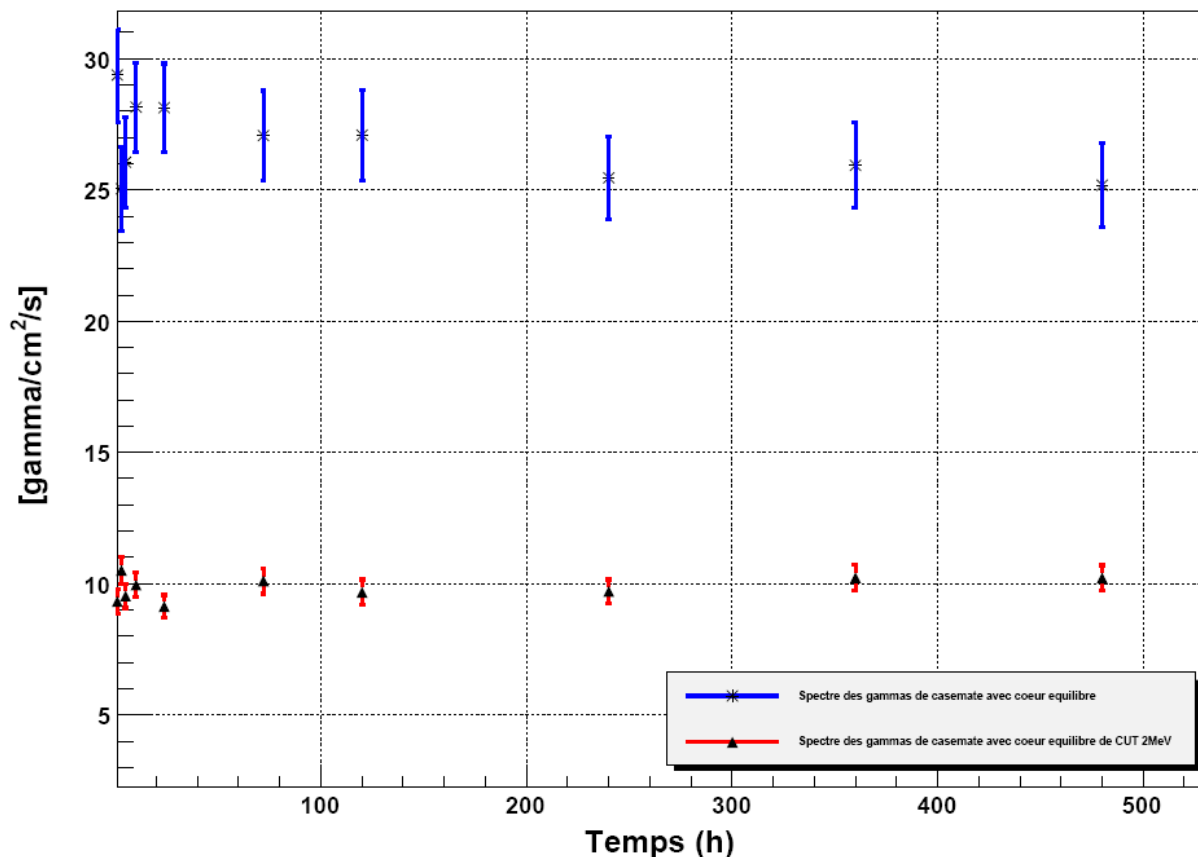


Fig. 4.4.17 : Différence du flux des photons entre les simulations avec et sans coupure à 2 MeV en fonction du temps.

Pour montrer la différence de flux des photons dans le cas sans coupure entre le cœur à l'équilibre (7 univers) et le cœur chargé en combustible neuf (1 seule univers), nous avons tracé la figure 4.4.18. On observe un facteur 5 entre les 2 cas.

Le flux de photons sur Nucifer (surface de 10m^2) deviendrait alors de 10MHz. Les mesures de bruit de fond font état d'un flux de 5MHz sur Nucifer. Nous en concluons que la valeur exacte dépend de la composition du combustible. Avec la simulation plus réaliste de Vincent Communeau on pourra utiliser une composition plus réaliste et améliorer la normalisation absolue du flux de photons simulée. Cependant les valeurs obtenues sont déjà en très bon accord avec les mesures et le spectre en énergie sera utilisé pour la simulation GEANT 4 de la réponse du détecteur au bruit de fond photons de l'expérience

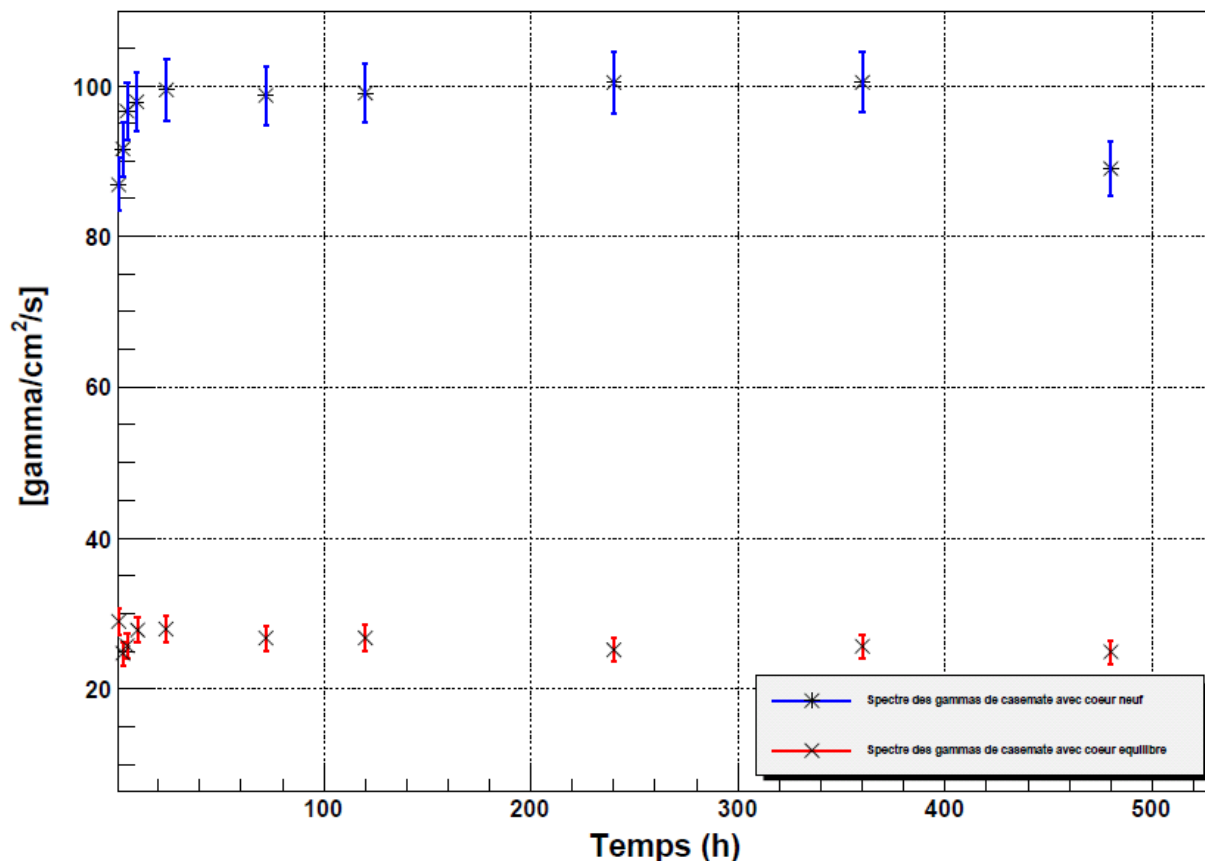


Fig. 4.4.18 : Différence du flux des photons dans la casemate avec le cœur chargé de combustible neuf et le cœur à l'équilibre en fonction du temps.

4.5. Conclusions et perspectives

4.5.1. Prédiction de l'émission en antineutrinos du réacteur OSIRIS

La simulation du réacteur OSIRIS, réalisée avec le code d'évolution MURE, et l'implémentation d'un premier scénario de rechargement a permis de réaliser une première étude du type de spectre d'antineutrinos qui pourraient être mesurés par l'expérience NUCIFER. Les taux de fission associés à un cycle de fonctionnement du réacteur pourront être calculés en suivant l'historique de puissance et des barres de contrôle du cycle considéré. L'inventaire obtenu pour l' ^{235}U dans le cas d'un cycle antérieur du réacteur est en très bon accord avec les résultats calculés par l'équipe d'OSIRIS ($<1\%$). Une telle simulation permettra de calculer le flux d'antineutrinos et leur spectre en énergie pour l'expérience Nucifer afin de les comparer aux données. Les spectres en énergie pourront être calculés par les deux méthodes (taux de fission * spectres ou bien sommation à partir des contributions des produits de fission), et les effets hors équilibre (évolution temporelle, capture neutronique) pourront être pris en compte. La simulation avec prise en compte du rechargement montre que la contribution du ^{239}Pu est faible et sera sans doute invisible avec les antineutrinos mesurés.

L'expérience Nucifer étant actuellement en prise de données, la comparaison des mesures aux simulations devrait être réalisée dans les tout prochains mois, donnant les conclusions sur la sensibilité d'un détecteur tel que Nucifer à la composition du combustible d'un réacteur de recherche, à sa puissance thermique. Nucifer a également un objectif de physique fondamentale et les spectres calculés avec les outils développés dans cette thèse serviront également à l'obtention de ces résultats [47].

4.5.2. Prédiction de l'émission photonique du réacteur OSIRIS pour Nucifer

Cette étude, bilan de l'analyse de plus d'une soixantaine de simulations, a permis d'étudier en détails les processus de production des neutrons et des gammas. Notamment, cette étude a permis de mieux comprendre :

- l'atténuation des gammas en fonction de leur énergie dans le cœur, la piscine et le béton
- la contribution des réactions de fluorescence du combustible
- l'importance des réactions de Bremsstrahlung pour les gammas présents dans le cœur et leur contribution négligeable dans la casemate
- l'origine d'une partie du bruit de fond neutronique mesuré dans la casemate OPERA qui ne proviendrait pas du réacteur directement mais des réactions (γ, n) sur le ^{40}K présent dans le béton
- la reproduction de l'ordre de grandeur du bruit de fond photonique de 5 MHz mesuré dans la casemate par la collaboration.

Les outils, la simulation réalisée et l'expertise développée seront utiles à la collaboration NUCIFER pour l'analyse des premières campagnes de mesures du détecteur. En particulier il apparaît que la cible de Nucifer est très sensible à ces photons même à l'intérieur du blindage, la caractérisation de ce bruit de fond sera donc cruciale afin de mieux sélectionner les antineutrinos mais aussi de bien estimer les erreurs systématiques associées.

Chapitre 5 :

Contribution à l'analyse d'une expérience réalisée avec la méthode TAGS pour la puissance résiduelle et les antineutrinos des réacteurs

Dans ce chapitre, le travail sur l'analyse de l'expérience TAGS à laquelle j'ai participé à Jyväskylä en novembre 2009 est présenté. Il s'agit d'une expérience proposée par nos collègues de l'IFIC, université de Valencia pour étudier des noyaux qui souffrent de l'effet Pandemonium importants notamment pour la puissance résiduelle. La liste des noyaux proposés [39] contient 2 noyaux issus de la proposition d'expérience de SUBATECH motivée par l'étude de noyaux contribuant de façon importante au spectre en énergie des antineutrinos issus de la fission de l' ^{235}U et du ^{239}Pu ; le ^{92}Rb et le ^{93}Rb , que nous avons pu mesurer de manière anticipée en novembre 2009. Cette mesure utilise la méthode TAGS (Total Absorption Gamma Spectrometer) [25], afin de compléter et corriger si besoin les mesures existantes effectuées avec des détecteurs au Ge.

La méthode TAGS, appliquée à la décroissance bêta, a pour but de déterminer la probabilité de décroissance bêta vers les niveaux du noyau fils, à partir de la mesure des gammas de désexcitation. 12 détecteurs BaF_2 ont été utilisés, couvrant un angle solide d'environ 4π avec une efficacité proche de 100%. Le principe est de mesurer l'énergie correspondant à la somme des énergies de gammas de décroissance. Avec un détecteur idéal qui couvrirait l'angle solide total, on mesurerait alors directement l'énergie des niveaux excités alimentés dans le noyau fils par la décroissance bêta du père, et la probabilité d'alimentation de ces niveaux. La méthode TAGS mesure ainsi l'énergie totale des gammas de décroissance provenant des niveaux peuplés des noyaux fils au lieu des transitions individuelles pour les détecteurs Ge. La contrepartie est l'utilisation de détecteurs qui présentent une résolution en énergie insuffisante pour identifier les noyaux émetteurs étudiés. Il est donc nécessaire de sélectionner le plus précisément possible les noyaux à étudier en amont du détecteur TAGS. Pour cela on peut utiliser le dispositif de l'Université de Jyväskylä qui contient un double piège de Penning afin de purifier le faisceau incident.

Dans ce chapitre, je présenterai dans une première partie le dispositif expérimental utilisé en novembre 2009. Dans une seconde partie je présenterai ma contribution à l'analyse de ces données, qui a porté particulièrement sur la calibration des 12 détecteurs et ainsi que des signaux sommes associés. Ce travail de calibration a été réalisé en parallèle par l'équipe de Nantes et l'équipe de Valence. Nous avons donc ensuite comparé les calibrations obtenues. Cette comparaison fera l'objet d'une partie du chapitre également. Enfin nous présenterons dans une dernière partie l'état actuel de l'analyse des données qui est désormais réalisée par Abdoul-Aziz Zakari-Issoufou pour sa thèse de doctorat.

5.1. Dispositif expérimental

5.1.1. Production du faisceau d'ions radioactifs

Cette partie présente la technique IGISOL (Ion Guide Isotope Separator On Line), appliquée à l'université de Jyväskylä, en Finlande. Pour toutes ces techniques, les produits de réactions sont arrêtés dans un milieu solide ou gazeux, puis, une fois ionisés, accélérés pour être séparés en masse. La source d'ions constitue un élément essentiel dans le dispositif. Dans le cas des cibles épaisses, les ions ne disposent pas d'une énergie de recul suffisante pour pouvoir s'en échapper et donc leur temps de sortie dépendra de leur aptitude à diffuser. Pour les cibles minces, une fraction importante s'en échappe et les ions finissent leurs courses dans un matériau "stoppeur" solide ou gazeux. Ils sont alors extraits du milieu au moyen de différentes techniques (diffusion thermique, etc.), puis ionisés dans la source d'ions (décharges électriques, laser, plasma, etc.)

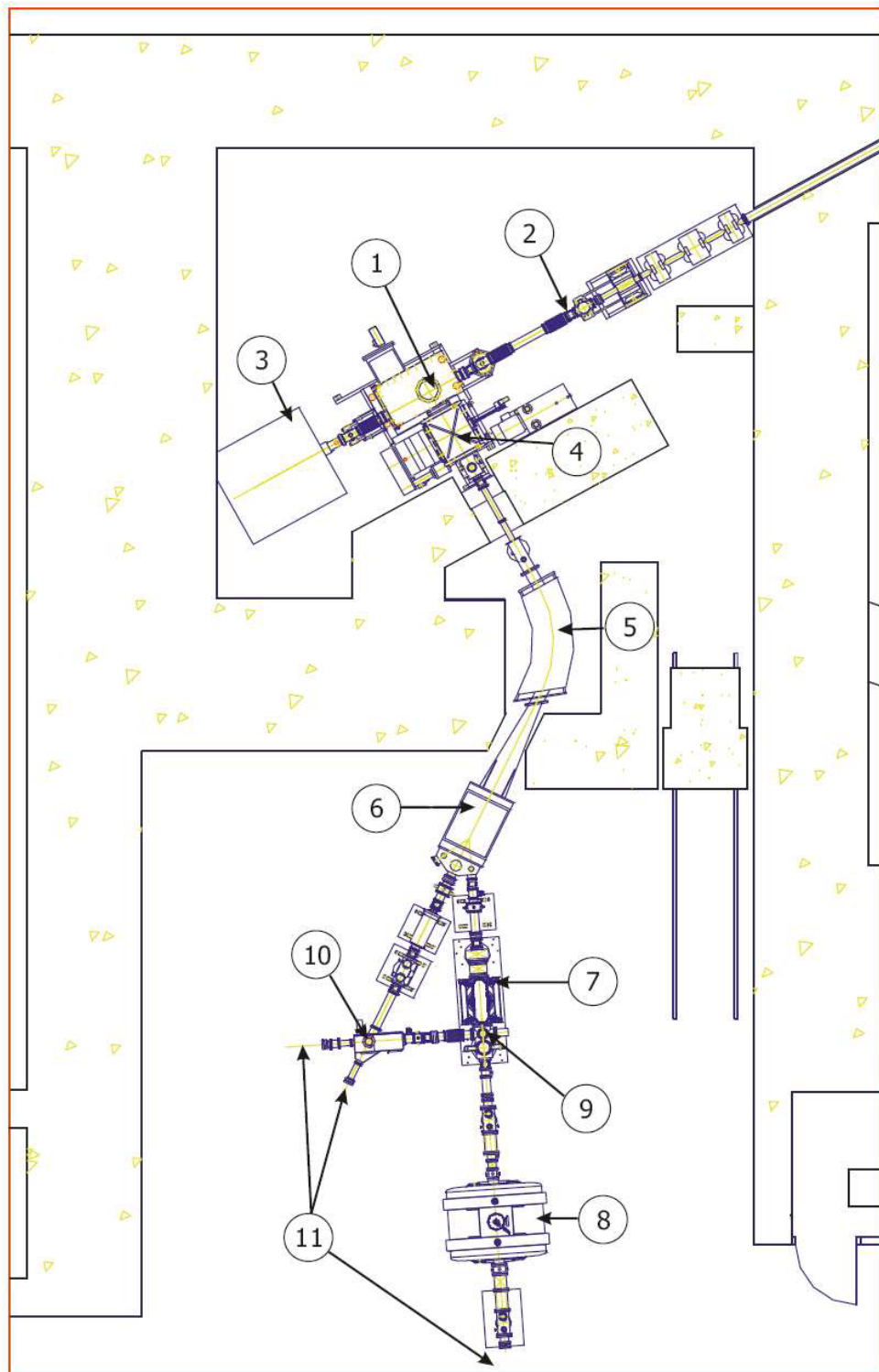


Fig. 5.1.1 : Profil d'équipement IGISOL. Sur la figure : 1. Guide d'ions, 2. Faisceau du cyclotron K130, 3. Décharge du faisceau, 4. Chambre d'accélération, 5. Dipôle d'aimant, 6. Switchyard, 7. RFQ, 8. Piège de Penning, 9. Déflecteur de mini quadripôle, 10. Déflecteur électrostatique et faisceau vers en haut, 11. Structure expérimentale [14].

Le principe de fonctionnement est le suivant (cf. figure 5.1.2) : dans le guide d'ions, le faisceau primaire provenant du cyclotron JYFL K130, normalement des protons de 15-35 MeV, frappe une cible fine d'uranium, créant ainsi une foule d'éléments radioactifs, via des réactions nucléaires. Si leur énergie de recul est suffisante, les produits formés s'échappent

hors de la cible et pénètrent dans une enceinte où ils sont ralentis par l'hélium sous une pression d'environ 100-300 mbar. Lors de leur thermalisation, les produits de fission, initialement fortement chargés et à haute énergie, voient leur état de charge diminuer très rapidement jusqu'à la charge $1+$; l'hélium, avec son potentiel d'ionisation très élevé, leur permet de demeurer à l'état ionique. Ensuite, l'hélium sert de porteur pour transporter hors de la chambre, via le trou d'extraction, les produits de réactions. Avant d'atteindre le trou d'extraction, un 'skimmer', à un potentiel négatif, permet à la fois de guider les ions et d'éliminer l'hélium. La chambre, après le skimmer, est gardée sous vide.

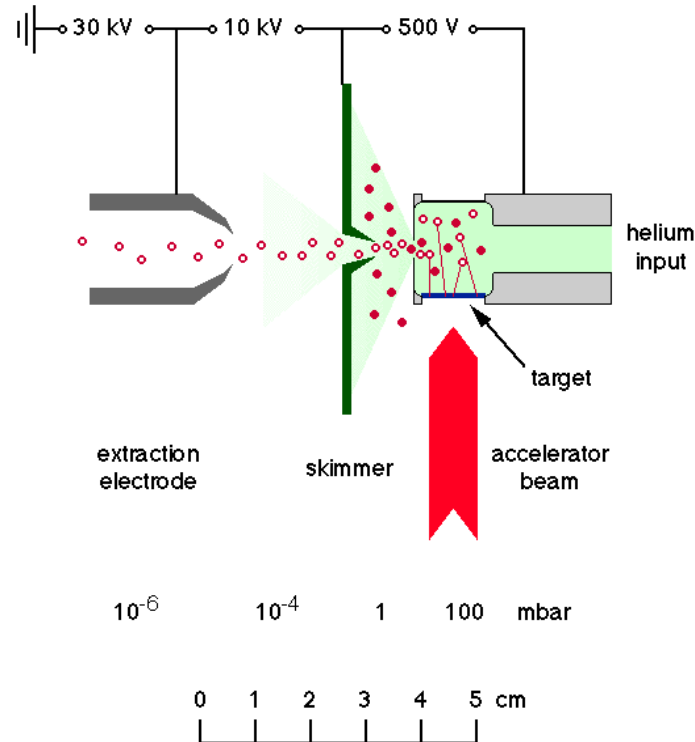


Fig. 5.1.2 : Principe général de fonctionnement d'un guide d'ions [103].

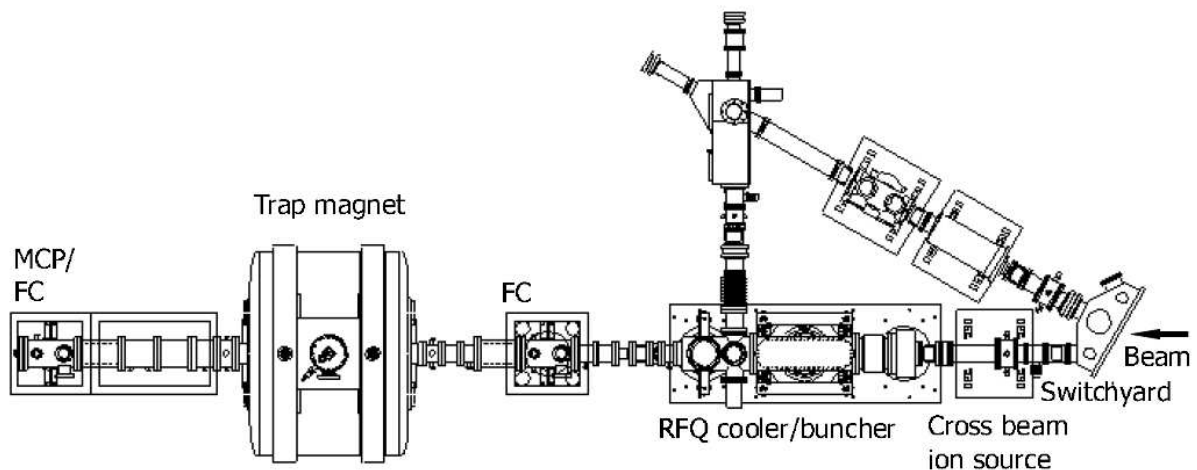


Fig. 5.1.3 : Profil de structure de JYFLTRAP [14].

Le piège JYFLTRAP

Le système JYFLTRAP (cf. figure 5.1.3) est une combinaison de Radio-Frequency Quadrupole (RFQ) rempli par gaz pour refroidir et grouper le faisceau et un piège de Penning pour purifier le faisceau et précisément sélectionner la masse.

Quadripole Radiofréquence (Radio-Frequency Quadrupole, RFQ) :

Le RFQ accepte le faisceau d'ions de basse qualité optique et le confine dans la direction radiale dans le champ électrique oscillant. La structure est remplie par de l'hélium à basse pression où les ions injectés sont thermalisés. Les ions sont dirigés vers l'extrémité d'extraction de la structure avec un potentiel de courant continu et le faisceau est groupé en appliquant une tension pulsée et en accumulant des ions dans un puits de potentiel créé par les champs à courant continu. Les ions sont ensuite libérés. La disponibilité d'un faisceau groupé permet un régime de piège dynamique et efficace pour être utilisé pour l'injection dans le piège de Penning.

5.1.2. Piège de Penning

Le piège de Penning est un piège électromagnétique qui confine les particules chargées par la combinaison entre un fort champ magnétique (confinement radial) et un champ électrique de quadripôle. Le champ électrique de quadripôle peut être créé en utilisant les trois électrodes : un anneau et deux bouchons. Les structures les plus populaires utilisées sont hyperboliques et cylindrique. La structure hyperbolique présente l'avantage d'un champ à la géométrie très précise, tandis que, la structure cylindrique est une construction plus ouverte et simplifie les injections des ions ou du gaz à l'intérieur du piège. Cependant, les mouvements des particules chargées dans le piège pour les deux structures sont les mêmes.

Dans la direction axiale, les particules subissent l'effet du champ électrique. La fréquence angulaire des particules est donnée par l'équation suivante :

$$w_z = \sqrt{\frac{qV_0}{md^2}} \quad 5.1$$

Où q est la charge d'une particule et m est sa masse. V_0 est le potentiel entre deux électrodes : anneau et bouchon et d est la caractéristique de la dimension du piège, définie par :

$$4d^2 = r_0^2 + 2z_0^2 \quad 5.2$$

Ce qui dépend au rayon intérieur de l'électrode d'anneau r_0 et l'espace entre deux électrodes de bouchon z_0 .

Sur le plan radial, il y a deux mouvements circulaires autour du champ magnétique : cyclotron réduit et magnéton. La somme entre les deux est la vraie fréquence cyclotron qui donne la relation entre la masse et la charge de la particule et le champ magnétique :

$$w_c = w_+ + w_- = \frac{q}{m} B \quad 5.3$$

Et chaque mouvement à la fréquence associée :

$$- \text{ la fréquence de cyclotron réduit : } w_+ = \frac{1}{2} \left\{ w_C + \sqrt{w_C^2 - 2w_Z^2} \right\} \quad 5.4$$

$$- \text{ la fréquence de magnétron : } w_- = \frac{1}{2} \left\{ w_C - \sqrt{w_C^2 - 2w_Z^2} \right\} \quad 5.5$$

ce qui nous donne la relation :

$$w_+^2 + w_-^2 + w_Z^2 = w_C^2 \quad 5.6$$

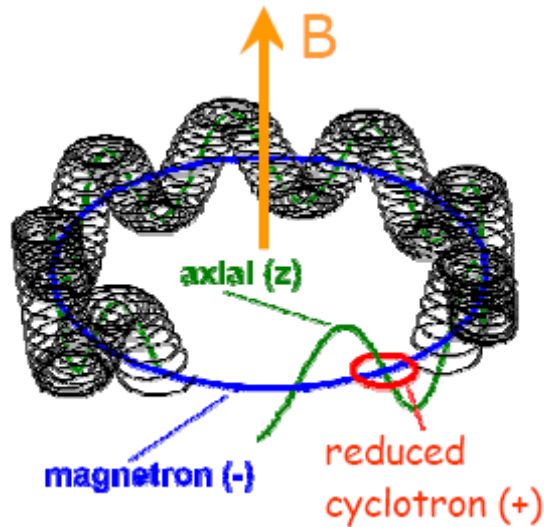


Fig. 5.1.4 : Illustration du mouvement d'un ion dans un piège de Penning.

Le piège de Penning de l'Université de Jyväskylä contient deux pièges. Le premier piège est utilisé pour séparer les isobares, le deuxième piège est utilisé pour séparer les isomères. La figure 5.1.5 présente un exemple d'identification obtenue pour des isobares pour la masse 105

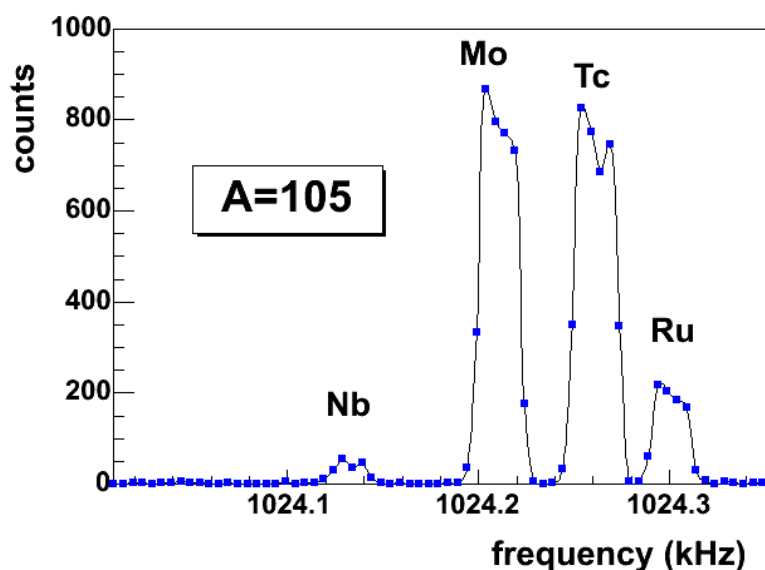


Fig. 5.1.5 : Un exemple de séparation de masse du piège de Penning pour la masse de 105 [14].

5.1.3. Installation expérimentale à Jyväskylä

5.1.3.1. Un nouveau détecteur TAGS

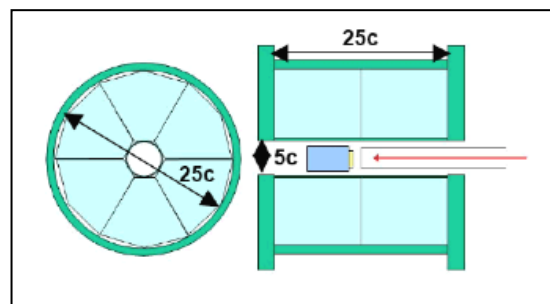
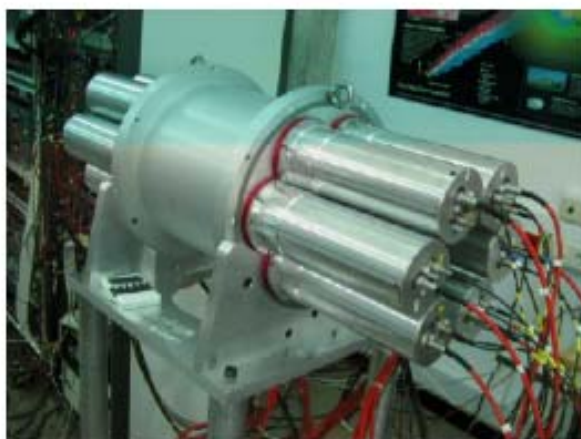


Fig. 5.1.6 : Détecteurs BaF₂ de l'expérience TAGS.

Un nouveau détecteur TAGS a été conçu par nos collègues de Valence et utilisé pour la première fois en novembre 2009. Les objectifs étaient les suivants [104] :

- le détecteur doit être compact pour permettre un transport aisé tout en ayant toujours une efficacité très élevée pour permettre la détection des cascades de photons. L'objectif est d'utiliser le détecteur auprès de plusieurs installations européennes de productions d'ions radioactifs ;
- le détecteur doit être capable de mesurer la multiplicité des cascades (en moyenne 4-5). Cette possibilité est nouvelle comparée aux détecteurs TAGS précédents. L'objectif est de se servir de cette information additionnelle dans la résolution du problème inverse pour améliorer la fiabilité de l'analyse des données [35], [36] :

- le détecteur doit avoir une résolution temporelle élevée afin de distinguer les neutrons des photons pour l'étude de noyaux riches en neutrons qui auraient une branche d'émission retardée de neutrons non-négligeable ;
- le détecteur doit avoir la meilleure résolution en énergie possible afin de distinguer les contaminations dans les spectres en énergie mesures et également mesurer la structure fine de la distribution de l'intensité bêta.

Ces contraintes ajoutées aux contraintes de taille des photomultiplicateurs ont mené à un détecteur constitué de 12 cristaux de BaF₂ montés en géométrie cylindrique (cf. fig.5.1.6) couvrant presque un angle solide de 4π autour du centre géométrique du dispositif. Le diamètre extérieur du cylindre est de 25 cm, sa longueur de 25 cm avec un trou longitudinal de diamètre 5 cm au centre.

Les cristaux de BaF₂ sont des scintillateurs légèrement hygroscopiques avec une réponse temporelle très rapide, une grande efficacité intrinsèque et une résolution en énergie modérée [96], [97].

Un inconvénient est la contamination intrinsèque des cristaux par des impuretés de radium (²²⁶Ra et ²²⁸Ra, Ra est analogue chimiquement au Ba). Le bruit de fond intrinsèque du détecteur est domine par les pics alpha provenant de la chaîne de décroissance du ²²⁶Ra.

Nous profiterons de cette contamination pour stabiliser les gains des cristaux individuels, ce qui est essentiel pour réaliser une somme des signaux des 12 détecteurs. L'isolation optique des 12 détecteurs est réalisée par une couche de téflon puis de mylar métallisé. L'épaisseur totale est de 250 µm. L'ensemble des cristaux est placé dans un conteneur en aluminium qui couple également 12 photomultiplicateurs 3 pouces à fenêtre de quartz (Electron Tubes Ltd. ETL 9821QB) montés dans des housses en aluminium avec un blindage de mu-métal. L'épaisseur de l'aluminium autour du trou central du détecteur est de 0.8mm.

5.1.3.2. Dispositif expérimental à Jyväskylä

L'installation expérimentale utilisée pour les mesures est illustrée sur la figure 5.1.7. Elle comprend le nouveau dispositif TAGS de douze détecteurs de BaF₂, et un détecteur de silicium.

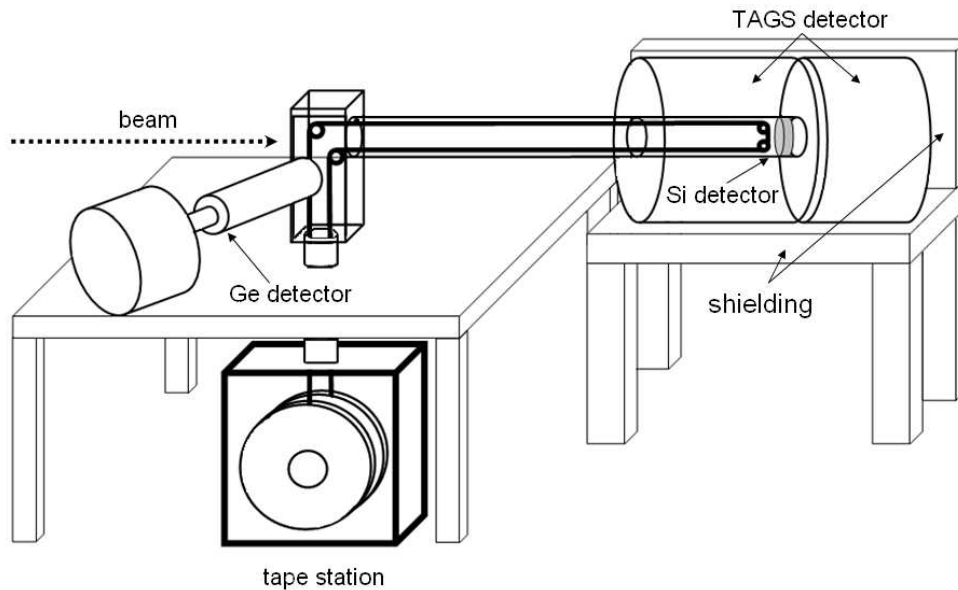


Fig. 5.1.7 : Installation expérimentale d'une expérience TAGS [14].

La figure 5.1.7 présente un exemple d'installation expérimentale d'une expérience TAGS. Dans notre cas il n'y avait pas de possibilité de placer un détecteur au Germanium. Pour mesurer les propriétés des noyaux correctement avec la méthode TAGS, les noyaux sont implantés sur une bande magnétique pendant un certain laps de temps que l'on appelle « temps de collection » avant d'être transportés à l'intérieur du détecteur TAGS via un tube en aluminium. Toutes ces opérations sont effectuées sous un vide d'environ $6 \cdot 10^{-5}$ mbar. Les mesures sont réalisées quand le temps de collection est égal au temps de cycle ($t_{\text{coll}} = t_{\text{cycle}}$) qui prend souvent la valeur de $4 \times T_{1/2}$ de la source étudiée ($T_{1/2}$ est la période radioactive du noyau). A la fin d'un cycle, la bande va bouger en remplaçant l'ancienne implantation par une nouvelle. La collection et la mesure du cycle sont contrôlées par une station de bande déroulante. Les détecteurs TAGS sont protégés et couverts par des blindages en plomb afin de réduire l'impact de bruits de fond éventuels. La figure 5.1.8 présente une photo du dispositif expérimental utilisé en novembre 2009.

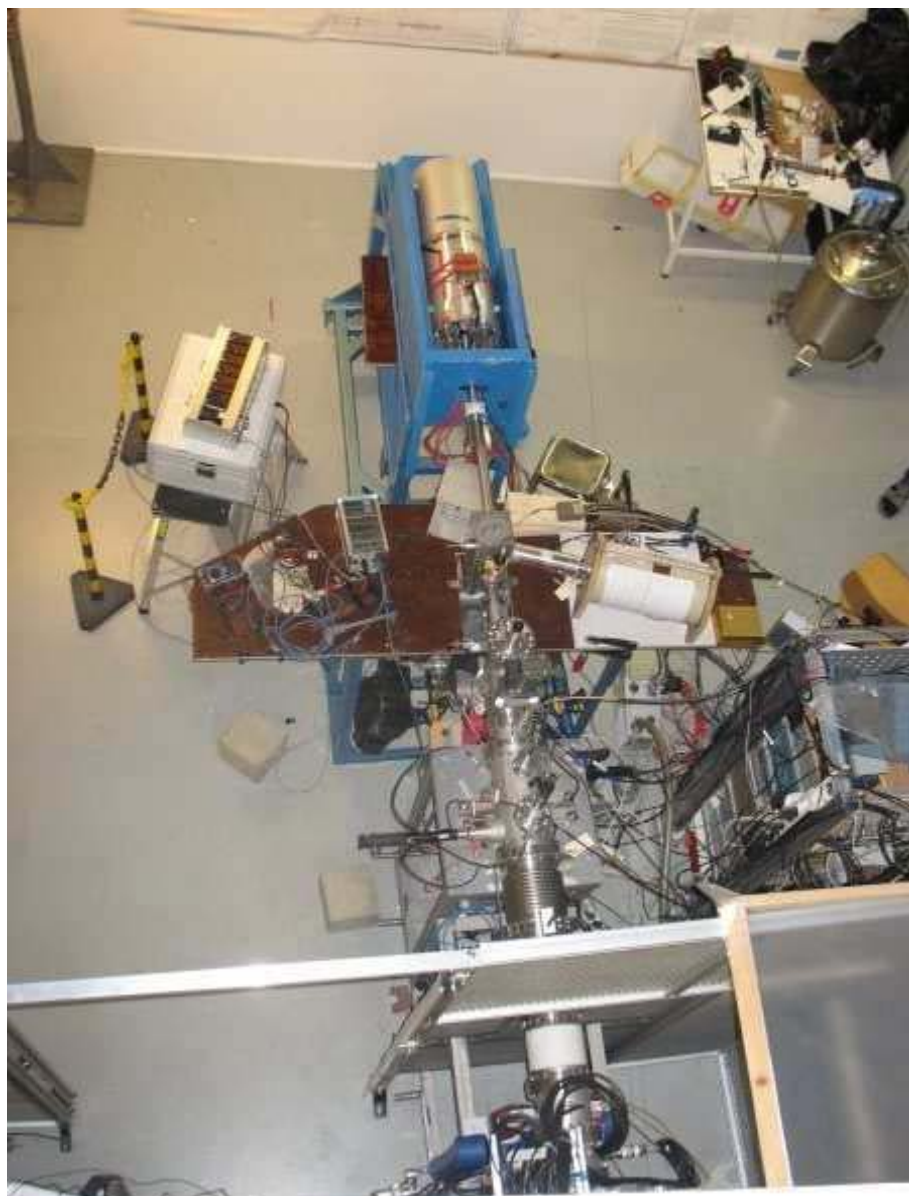


Fig. 5.1.8 : Photo de l'installation utilisée pour l'expérience, vue d'en haut.

5.1.3.3. Electronique et acquisition des données

L'électronique et l'acquisition des données ont été conçues pour enregistrer les 12 signaux individuels provenant de chaque ensemble cristal-photomultiplicateur et, en plus, la somme « hardware » (spectre d'absorption totale) de tous les signaux des photomultiplicateurs. Ceci nous permettra de reconstruire également la somme « software » qui donne le spectre d'absorption totale à partir des signaux enregistrés individuellement pour les 12 détecteurs.

L'électronique est décrite en détails dans la référence [104]. Le schéma complet de l'électronique de l'expérience est reproduit dans la figure 5.1.9 à partir de la référence [104].

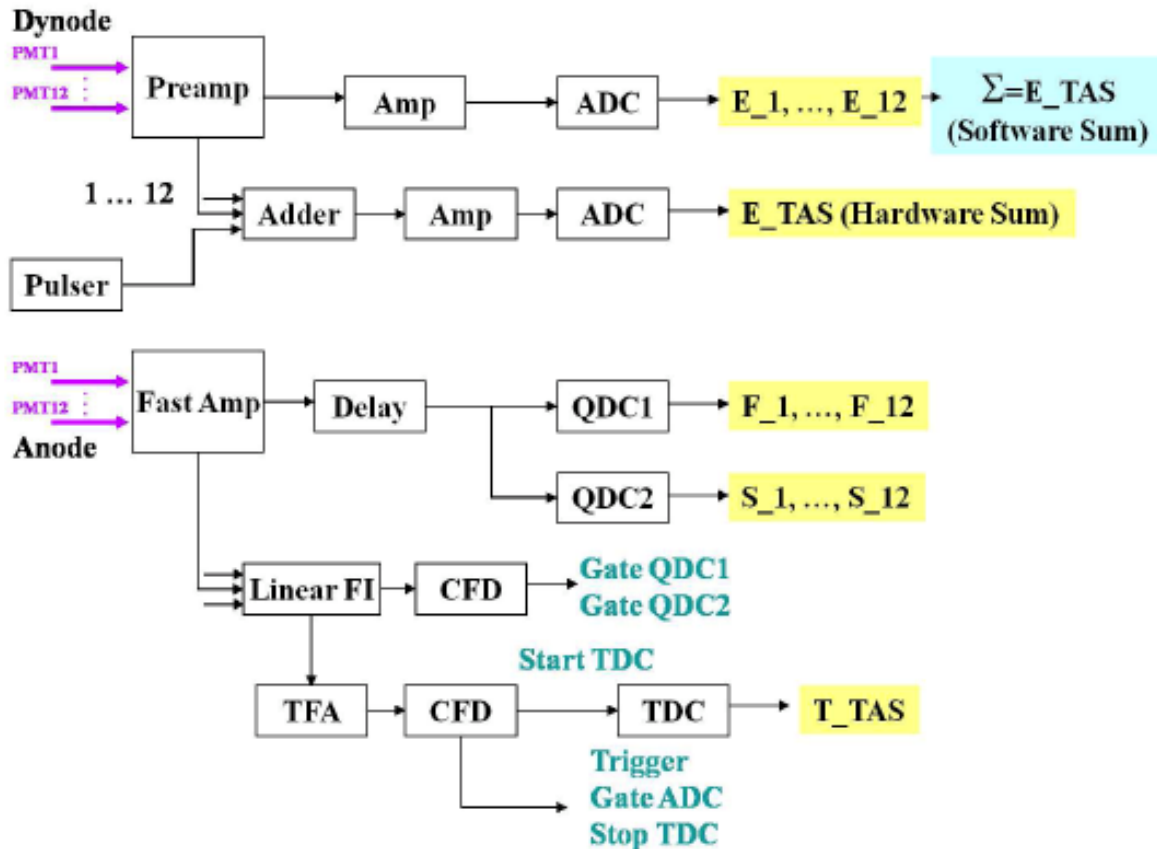


Fig. 5.1.9 : Schéma de l'électronique de l'expérience [104].

Les signaux d'énergie mesurés dans chaque détecteur sont donnés par les signaux des dynodes des photomultiplicateurs, pré-amplifiés puis amplifiés et enfin digitalisés dans un ADC. Nous reconstruirons la somme software à partir de ces signaux. En parallèle, les 12 signaux sont sommés électroniquement puis la somme est amplifiée et codée dans un ADC. Les signaux d'anode des photomultiplicateurs sont utilisés pour effectuer la discrimination alpha/gamma. En effet, c'est la discrimination en forme des signaux qui est employée. On intègre les signaux d'anode dans deux portes distinctes : l'une va intégrer dans un QDC la partie montante du signal (composante « rapide ») et l'autre la partie descendante du signal après un retard ajusté (partie décroissante, composante « lente »), voir cf. figure 5.1.10. Les portes d'intégration sont créées par des signaux de temps provenant de discriminateurs à fraction constante, à partir des signaux d'anode qui passent dans un amplificateur rapide.

Un dernier signal temporel est obtenu via un amplificateur à filtre temporel (Timing Filter Amplifier, TFA), qui donnera le signal de déclenchement de l'acquisition (signal trigger). Pour chaque trigger, les informations provenant des ADC, QDC et TDC sont enregistrées, événement par événement en mode liste.

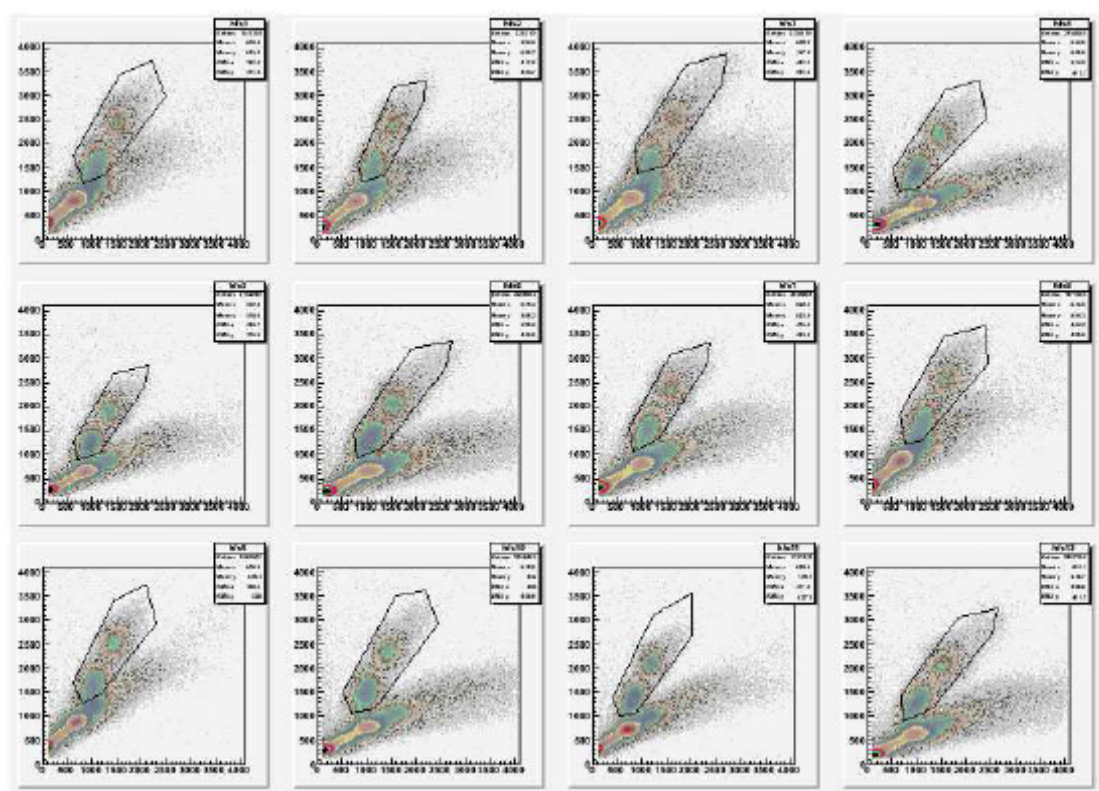


Fig. 5.1.10 : Spectre lent et rapide pour sélectionner le pic alpha [104].

Lors de l'analyse des données nous aurons à traiter ou consulter 3 types de fichiers contenant les données sous différentes formes. Pour chaque « run » (prise de données), nous disposons de :

- fichier « .lmd » contenant les données brutes que nous convertissons en TTree du logiciel ROOT [105] pour les analyser ;
- histogrammes de ROOT qui sont des fichiers générés pendant la prise de données au début de chaque run automatiquement, contenant une partie des données du run ;
- des fichiers .root contenant tous les histogrammes associés au run considéré.

En réalité ces fichiers ne contiennent pas la globalité des données en raison d'une erreur d'écriture des données pendant l'expérience. La statistique pourrait donc être un facteur limitant pour certains des noyaux étudiés.

5.2. Contribution à l'analyse : calibration en énergie des détecteurs

Je vais détailler ci-dessous les étapes de l'analyse de l'expérience que j'ai effectuée. J'ai pris en charge une partie de l'analyse des données concernant les noyaux $^{92,93}\text{Rb}$, d'intérêt pour la puissance résiduelle et les antineutrinos.

Le but de cette analyse est de calculer la distribution d'alimentation bêta des niveaux dans le noyau fils (« beta feeding »). La distribution de force bêta dépend directement de l'alimentation bêta. L'analyse en question consiste dans les étapes suivantes :

- Calibration en énergie et en résolution du détecteur en utilisant des sources connues ;
- Comparaison des données de calibration avec la simulation du détecteur afin de valider la simulation de la réponse du détecteur ;
- Calcul de la réponse du détecteur avec la simulation ;
- Calcul de l'alimentation bêta pour chaque niveau d'énergie comme solution du problème inverse (passage des données mesurées à la prédiction théorique).

La première étape de l'analyse de ce type d'expérience, qui est complexe, consiste à calibrer les données en énergie. A cette fin plusieurs prises de données avec des sources de rayonnement gamma à diverses énergies ont été effectuées.

5.2.1. Mesures réalisées

Afin de caractériser la réponse du spectromètre TAGS nous avons pris des mesures avec des sources avant et après l'expérience, auprès du dispositif de Jyväskylä.

Les sources utilisées sont les suivantes :

- ^{60}Co : 2 photons à 1173 et 1332 keV ;
- ^{137}Cs : 1 photon à 661 keV ;
- ^{22}Na : 2 photons à 511 keV et 1 photon à 1274keV ;
- une source mixte multi-photons (^{137}Cs et ^{152}Eu) : photons à 661 keV ;
- une source de ^{24}Na créée avec le faisceau de Jyväskylä : photon à 472.2keV.

Des mesures avec des sources de ^{60}Co , ^{137}Cs et ^{22}Na ont également été prises avant l'expérience à l'IFIC. Ces mesures ont été analysées en même temps que j'analysais les mesures avec les sources réalisées à Jyväskylä. L'objectif était de mettre au point la procédure de calibration tout en comparant les calibrations obtenues. Les sources employées avaient une activité autour de 10kBq et les « runs » de mesure duraient approximativement une heure, afin d'accumuler assez de statistique. Chaque prise de données associée à une source est accompagnée d'une mesure de bruit de fond (sans source) avant et après la mesure de la source. Ceci nous permettra de soustraire le bruit de fond du spectre en énergie associé à une source et d'en extraire la réponse du détecteur qu'il faudra reproduire par la simulation.

5.2.2. Résultats

5.2.2.1. Calibration en énergie

Nous avons tout d'abord vérifié tous les fichiers de données disponibles à la suite de l'expérience et nous les avons répertoriés.

Lors de cette expérience nous avons dû faire face à une instabilité des Hautes Tensions des photomultiplicateurs lisant les 12 détecteurs BaF₂. Afin de pouvoir établir une calibration en énergie valable tout au long des prises de données des noyaux d'intérêt, nous avons décidé

de nous servir de la position du pic alpha de plus haute énergie provenant de la contamination naturelle des détecteurs BaF₂, que nous avons ajustée pour chaque prise de données (que nous appellerons « run ») et pour chaque détecteur pour compenser les instabilités de la Haute Tension.

5.2.2.1.1. Ajustement des pics alpha pour chaque détecteur et chaque run

J'ai relevé dans un premier temps toutes les positions des pics alpha pour chaque détecteur et chaque run de bruit de fond, ainsi que chacun des runs de source de ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ²²Na et source multi-gammas. Pour chacun de ces fichiers, j'ai obtenu le centroïde du pic alpha d'intérêt par un ajustement utilisant une fonction Gaussienne asymétrique associée à un bruit de fond linéaire (cf. figure 5.2.1).

Nous avons ensuite estimé la différence maximale acceptable entre les positions des centroïdes des pics alpha entre les runs. Nous avons fixé cette différence à 5 canaux maximum. A titre d'exemple est présentée sur la figure 5.2.1 la différence entre 2 runs de source pour le détecteur 10, pour un cas où les deux centroïdes des pics alpha sont séparés de 6 canaux. La différence à l'emplacement du pic est toujours compatible avec zéro statistiquement, mais nous voyons des petites distorsions qui nous font nous limiter à 5 canaux.

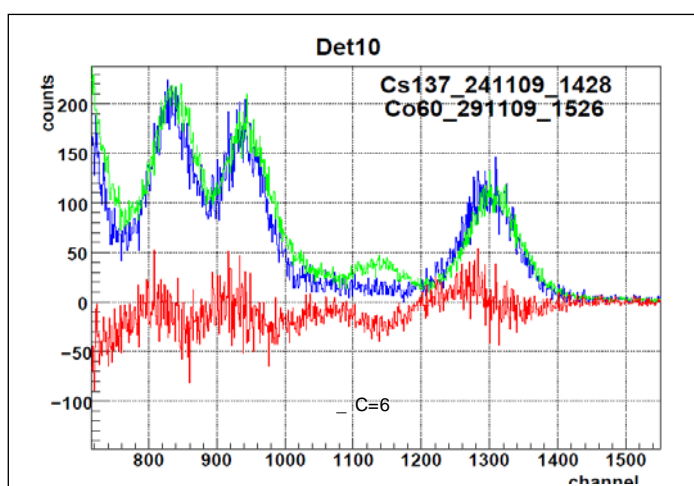


Fig. 5.2.1 : Différence (en rouge) entre un run de la source de ⁶⁰Co (en vert) et un run de la source ¹³⁷Cs (en bleu), après normalisation des pics alpha.

J'ai ensuite tracé les positions des centroïdes des pics alpha en fonction du temps (de tous les runs de l'expérience) pour chaque détecteur. La figure 5.2.2 nous montre l'instabilité de la position du pic alpha et donc du gain de la mesure. L'erreur sur les données indiquées sur l'exemple de la figure 5.2.2 est l'écart maximal toléré de 5 canaux.

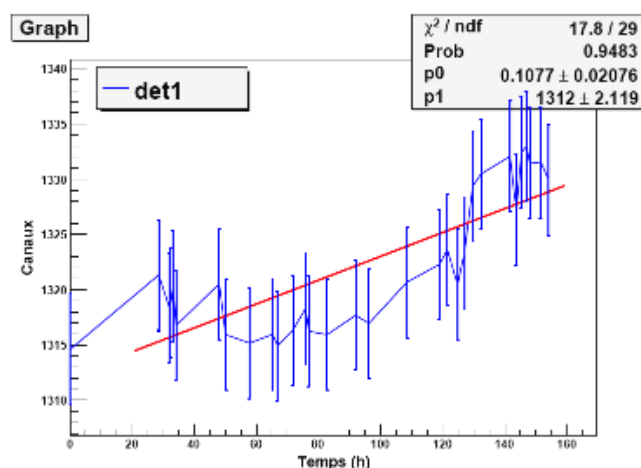


Fig. 5.2.2 : Position du pic alpha en fonction du temps pour le détecteur 1 (données en bleu, régression linéaire en rouge). L'erreur indiquée provient de l'écart maximal toléré de 5 canaux.

Suite à ces études, nous avons établi la stabilité des différents détecteurs. Seuls deux des détecteurs montrent de grandes instabilités dans le temps (détecteurs 5 et 9).

Pour chaque détecteur, nous avons ensuite recalé les données prises avec les sources de calibration et les bruits de fond associés en fonction du temps en utilisant les positions relatives des pics alpha.

5.2.2.1.2. Calibration en énergie des 12 détecteurs

Comme dit précédemment, les données de bruit de fond ont dû être recalées de la même façon afin de les soustraire des données provenant des sources. Les données de bruit de fond sont normalisées aux données des sources en considérant la partie haute énergie des spectres dans une région où seul le bruit de fond contribue.

Afin de soustraire le bruit de fond aux données prises avec les sources, nous avons utilisé les mesures prises avant et après les runs de calibration. Pour procéder aux soustractions, nous avons distingué 2 cas :

- les pics alpha des deux runs de bruit de fond et de la source sont situés à la même position dans la marge de 5 canaux définie. Dans ce cas nous réalisons la soustraction de la somme des deux runs de bruit de fond renormalisés à la même intégrale dans la zone du pic alpha ;
- si les 3 pics alpha (2 bruits de fond et source) ne sont pas à la même position :
 - nous décalons les runs de bruit de fond en multipliant les données par un facteur correctif égal au rapport des positions des pics alpha
 - nous renormalisons les données et effectuons la soustraction comme précédemment.

Les spectres de source soustraits du bruit de fond (exemple de soustraction pour le ^{22}Na en figure 5.2.3) ont été utilisés pour effectuer la calibration en énergie décrite ci-dessous.

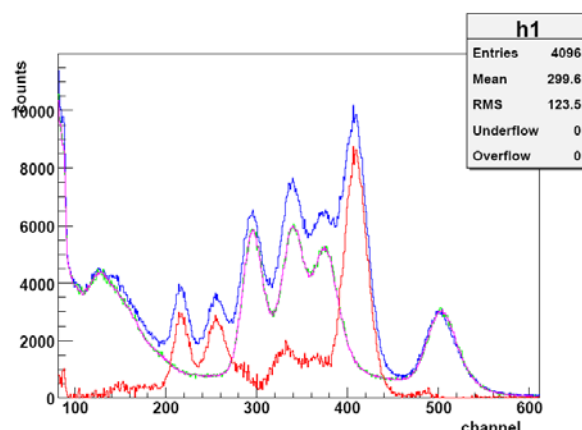


Fig. 5.2.3 : En rouge est le produit de soustraction du bruit de fond (vert et violet) des données de la source ^{22}Na (bleu).

5.2.2.1.2.1. Pré-calibration avec la source de ^{22}Na

Une première calibration en énergie (pré-calibration) des 12 détecteurs a été effectuée en utilisant tous les runs disponibles du ^{22}Na pris à Jyväskylä en Novembre 2009. Le run le plus long a été séparé en deux parties avec 4000000 événements chacun. Le calcul de calibration linéaire des coefficients angulaires (a) et l'interception (b) pour chaque run est réalisé à l'aide de deux pics gamma à 511 et 1274 keV.

Pour chaque détecteur, on trace les valeurs des coefficients de calibration a et b en fonction de la position du pic alpha et on ajuste ces valeurs avec une fonction linéaire. La figure 5.2.4 rend compte de ces deux ajustements pour le détecteur 2.

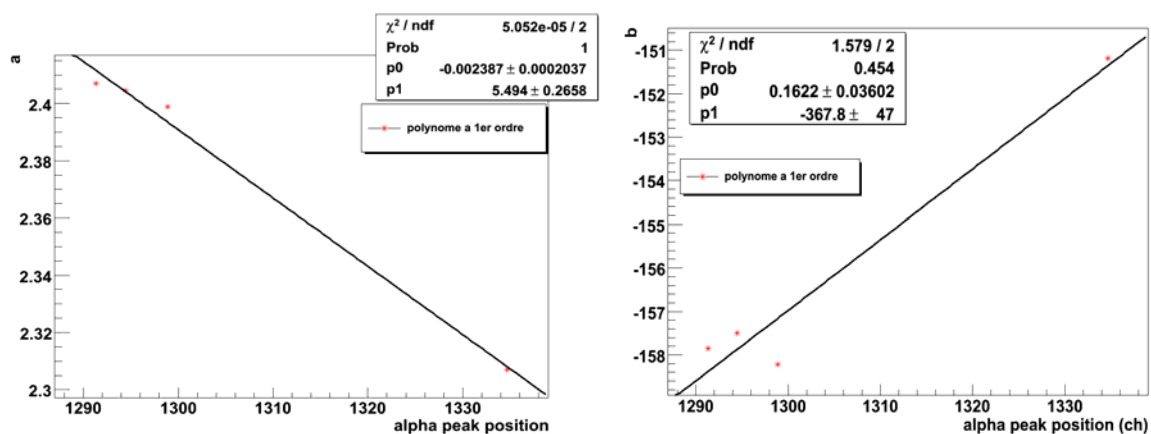


Fig. 5.2.4 : Ajustement linéaire du coefficient a (gauche) et b (droit) en fonction de position du pic alpha pour le détecteur 2.

5.2.2.1.2.2. Source de ^{60}Co et ^{137}Cs

La source de ^{60}Co émet deux photons l'un de 1173 keV et l'autre de 1332 keV. J'ai donc réalisé les ajustements avec une double fonction Gaussienne.

La figure 5.2.5 présente les données avant soustraction en bleu pour l'un des détecteurs, les données de bruit de fond en violet et les données après soustraction du bruit de fond en rouge.

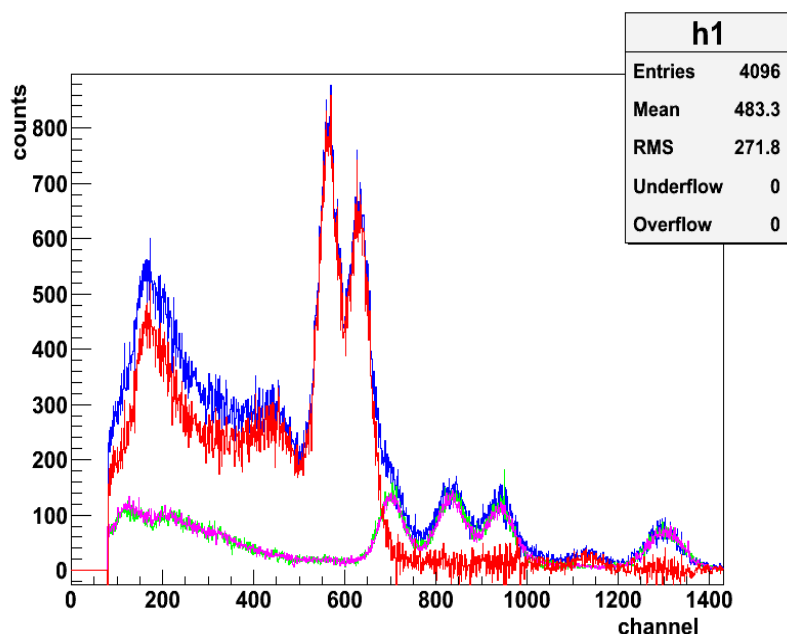


Fig. 5.2.5 : Exemple de données de la source de ^{60}Co avant soustraction en bleu pour l'un des détecteurs, les données de bruit de fond en violet et les données après soustraction du bruit de fond en rouge.

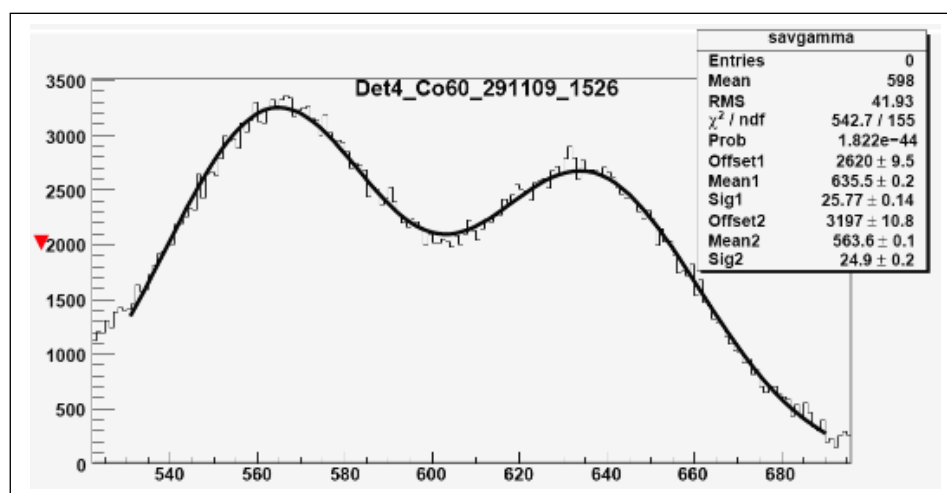


Fig. 5.2.6 : Exemple d'ajustement avec la double fonction de Gauss pour le détecteur 4.

Nous n'avons finalement pas utilisé les calibrations obtenues avec les sources de ^{60}Co et de ^{137}Cs , car elles étaient moins précises que celles obtenues avec les données prises avec la source de ^{22}Na .

5.2.2.1.2.3. Généralisation des coefficients de calibration en fonction des positions des pics alpha

A partir des coefficients de calibration a et b de chaque détecteur, on recalcule des coefficients fonction de la position du pic alpha associé à chaque détecteur pour toutes les sources, A et B. Ensuite, on utilise la formule de calibration linéaire suivante :

$$E_{calib} = A \times x + B \quad 5.7$$

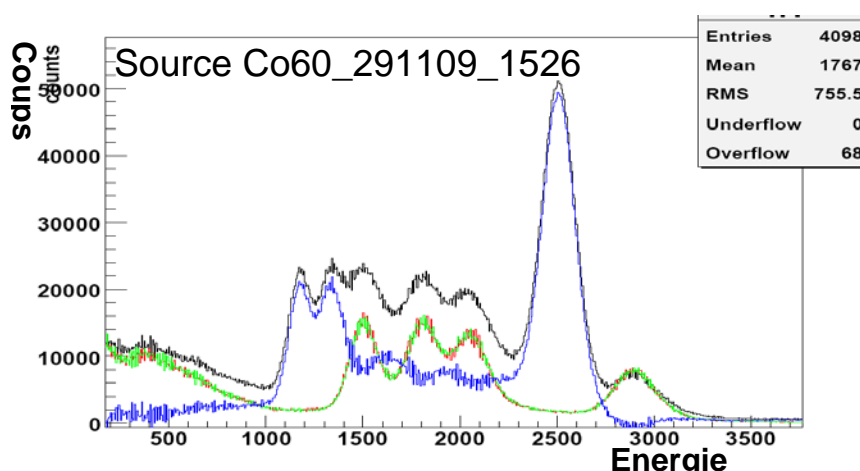
avec x : l'indice de canal du pic et E_{calib} est l'énergie de calibration correspondant à ce pic. Nous avons donc dans un premier temps réalisé une première calibration de toutes les données de sources et bruits de fond avec la source de ^{22}Na avec les coefficients A et B dépendants des positions des pics alpha.

5.2.2.1.3. Calibration des sommes logicielles et statistiques

Pour le reste de notre procédure de calibration, nous considérons seulement les trois suivants runs (qui ont les meilleures statistiques parmi les runs pris à Jyväskylä): Co60_291109_1526, Cs137_291109_1752, Na22_291109_1249. Ces trois runs ont été pré-calibrés comme décrit précédemment. Puis, nous pouvons:

1. Sommer les 12 détecteurs, événement par événement pour avoir le spectre de la somme logicielle (software sum spectrum) qui est un spectre d'absorption totale.
2. Sommer les 12 détecteurs pré-calibrés bin par bin pour avoir le spectre d'un détecteur unique global (somme statistique).

Dans la figure ci-dessous, vous pouvez voir la somme logicielle des 3 sources (courbe noire) par rapport à la somme logicielle des bruits de fond (courbes rouge et verte) et le spectre de source soustrait des bruits de fond (courbe bleue). Les deux runs de bruits de fond sont pris juste avant et après le run de la source sélectionnée. Ils ont également été pré-calibrés et leur spectre d'absorption totale reconstruit.



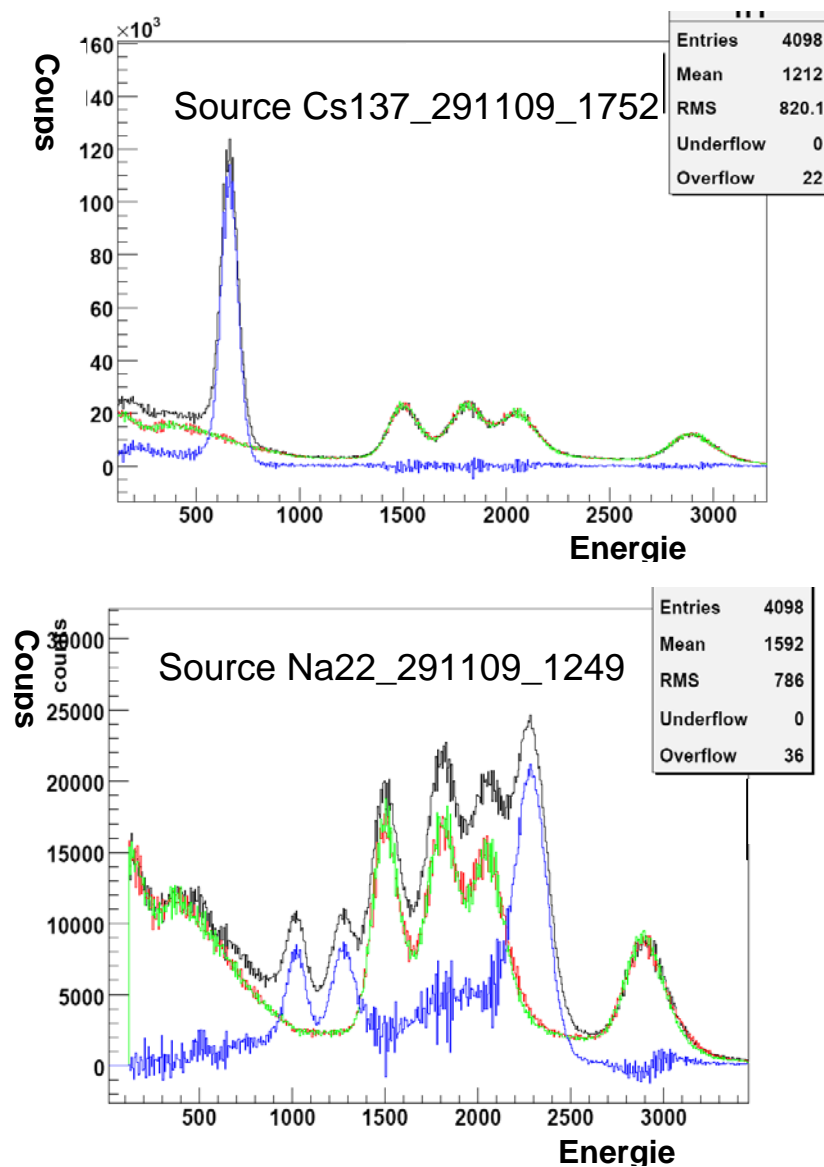


Fig. 5.2.7 : Spectre de la somme logicielle (spectre d'absorption totale) de chaque source après avoir soustrait les bruits de fond correspondants (courbe bleue) superposés avec le spectre de la somme logicielle de la source (courbe noire) et les spectres de somme des bruits de fond (courbe rouge et verte).

En faisant la somme statistique des spectres de 12 détecteurs après les avoir soustrait par les bruits de fond, on peut obtenir les figures suivantes (la courbe somme en rouge, les autres couleurs représentent les 12 détecteurs).

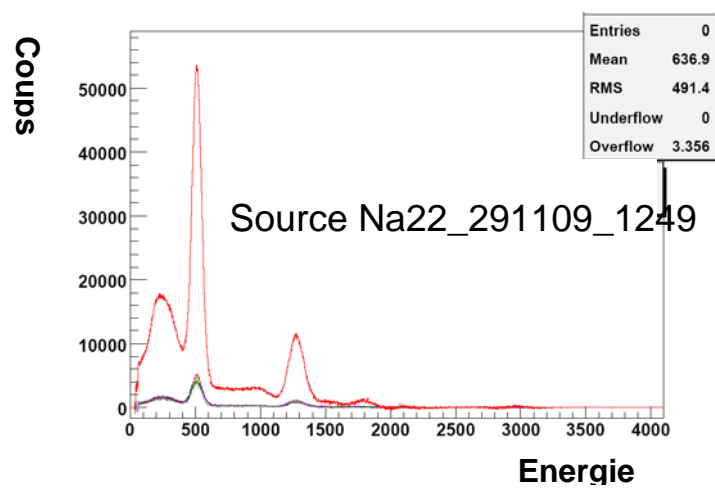
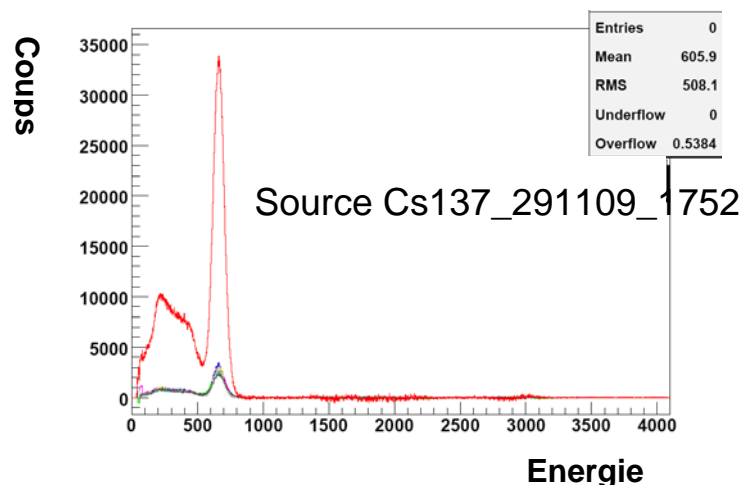
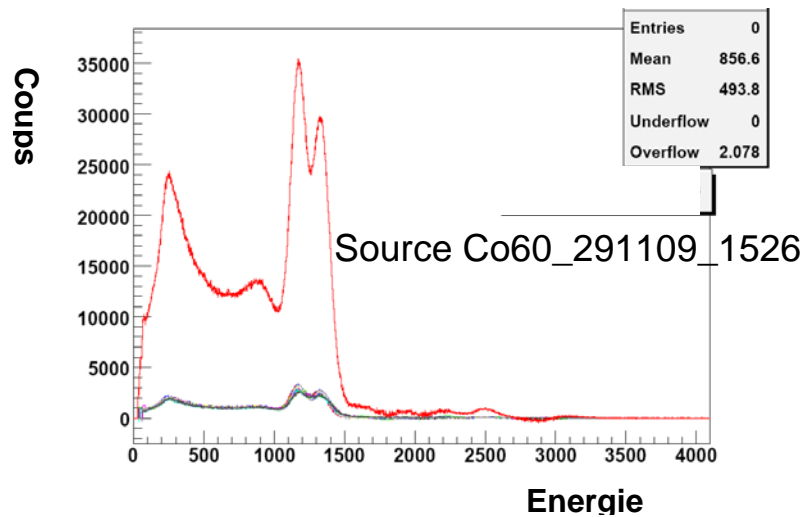


Fig. 5.2.8 : Spectres sommes des 12 détecteurs après avoir soustrait par les bruits de fond (courbe rouge) et les spectres individuels de chaque détecteur (autres couleurs).

5.2.2.1.4. Calibration de la somme logicielle

La valeur moyenne des pics gamma pour les différentes sources a été calculée en ajustant les données avec une fonction asymétrique gaussienne + un fond linéaire sauf le ^{60}Co où les centroides des deux pics générés par les deux photons, l'un de 1173 keV et l'autre de 1332 keV, ont été estimés avec un ajustement d'une double fonction Gaussienne + un fond linéaire. Cette valeur moyenne expérimentale, la valeur de référence et la différence entre ces deux les valeurs sont rapportées dans le tableau 5.2.1 pour le somme logiciel.

Source	E Calculée [keV]	Ref E [keV]	Différence [keV]
Na22_291109_1249	1019.9	1022	-2.1
	1275.3	1274.5	0.8
	2294.5	2296.5	-2
Cs137_291109_1752	659.61	661.66	-2.05
Co60_291109_1526	1172	1173.2	-1.2
	1335	1332.5	2.5
	2506.5	2505.7	0.8

Tableau 5.2.1: Comparaison les valeurs en énergie des pics alpha entre celles calculées expérimentales et celles de référence (somme logiciel).

Dans la figure 5.2.9, nous traçons la position du pic de source provenant des spectres pré-calibrés en fonction de l'énergie de référence. La calibration globale finale est effectuée par un ajustement d'une fonction linéaire.

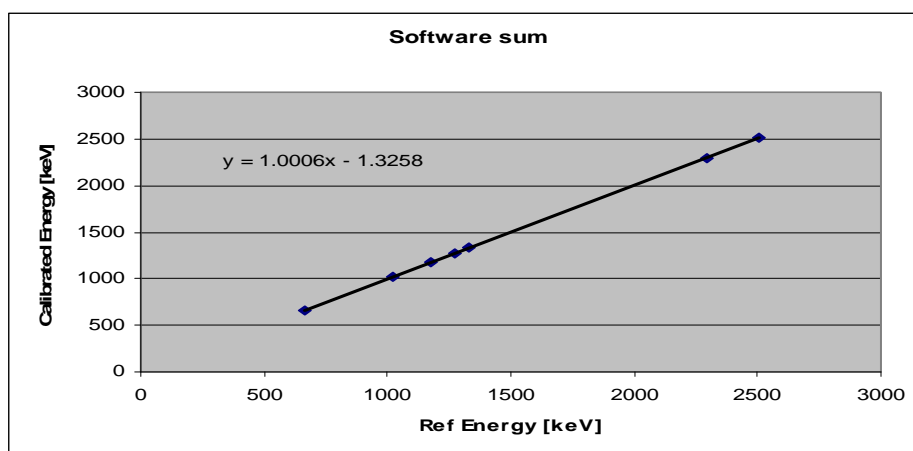


Fig. 5.2.9 : Pics expérimentaux en fonction de pics de référence (en énergie) (somme logiciel).

Dans la figure 5.2.10, nous pouvons voir l'écart entre l'énergie expérimentale et l'énergie de référence en fonction de l'énergie de référence. Nous remarquons que la plus grande différence est seulement d'environ 2,5 keV pour le pic du ^{60}Co .

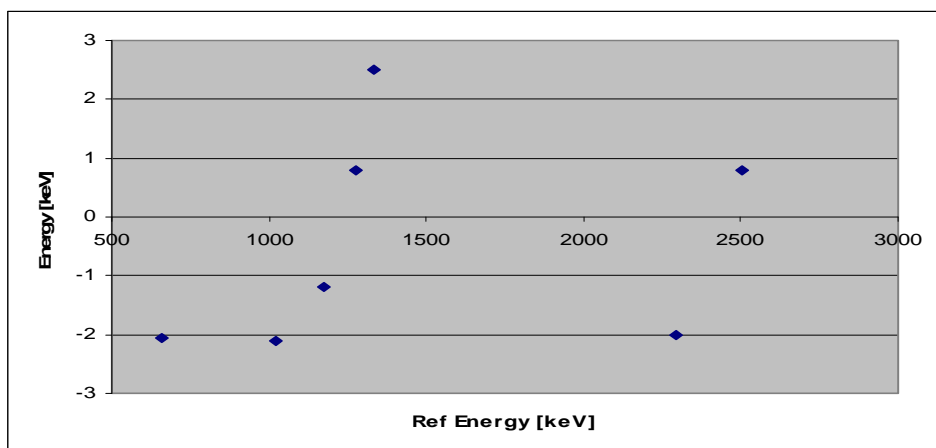


Fig. 5.2.10 : Différence entre énergie expérimentale et de référence en fonction de l'énergie de référence (somme logiciel).

5.2.2.1.5. Calibration de la somme statistique

Dans ce paragraphe, nous allons répéter la procédure de calibration pour la somme statistique présentée dans la section précédente pour le somme logiciel.

Le tableau 5.2.2 montre, pour chaque pic gamma des sources sélectionnées, la valeur expérimentale, la valeur de référence et la différence entre ces deux valeurs.

Source	E Calculée [keV]	Ref E [keV]	Différence [keV]
Na22_291109_1249	510.18	511	-0.82
	1273.56	1274.5	-0.94
Cs137_291109_1752	659.33	661.66	-2.33
Co60_291109_1526	1172	1173.2	-1.2
	1333	1332.5	0.5

Tableau 5.2.2 : Comparaison des valeurs en énergie des pics alpha entre celles calculées expérimentales et celles de référence (somme statistique).

La figure 5.2.11 montre la position du pic de source provenant de la pré-calibration en fonction de l'énergie de référence. Egalement dans ce cas, la calibration globale finale est réalisée par l'ajustement avec une fonction linéaire.

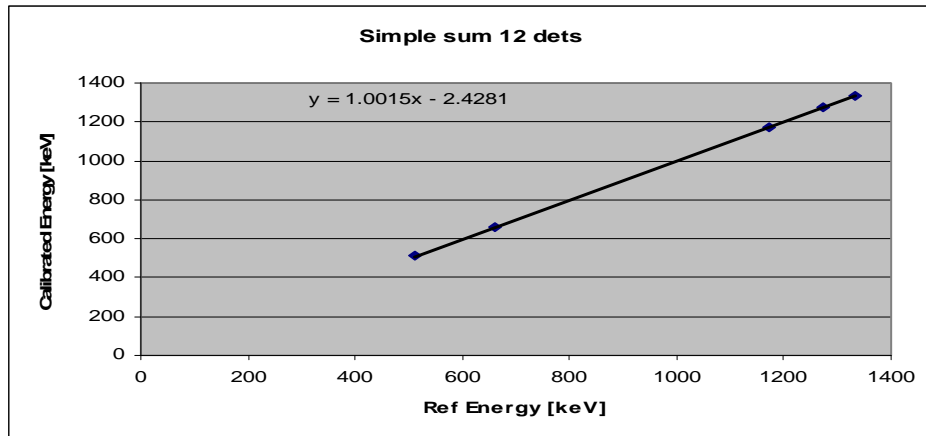


Fig. 5.2.11 : Pics expérimentaux en fonction de pics de référence (en énergie) (somme statistique).

Figure 5.2.12 représente la différence entre énergie expérimentale et de référence en fonction de l'énergie de référence. Nous remarquons que la plus grande différence est pour le pic du ^{137}Cs et il est de 2,33 keV.

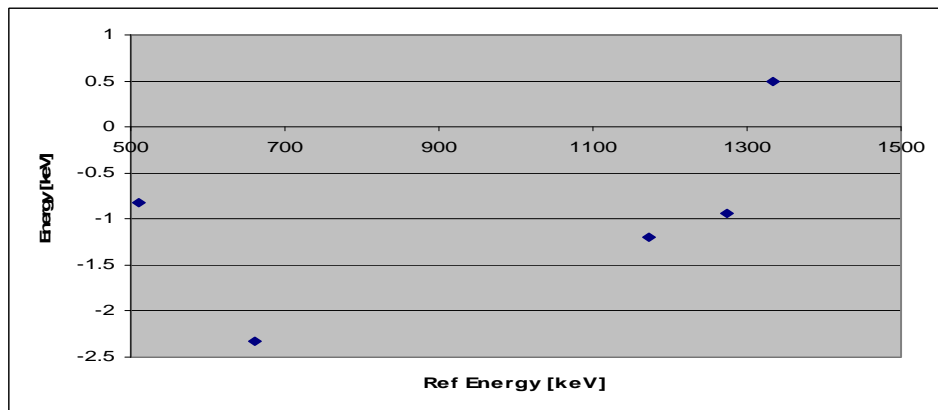


Fig. 5.2.12 : Différence entre énergie expérimentale et de référence en fonction de l'énergie de référence (somme statistique).

5.2.2.2. Résolution en énergie

Dans ce paragraphe, nous allons discuter de la résolution en énergie calculée en utilisant les spectres obtenus à partir des deux techniques: la somme logicielle et la somme statistique.

La fonction d'ajustement utilisée pour estimer la valeur moyenne et sigma de chaque pic de gamma, sauf les deux pics de ^{60}Co , est une fonction gaussienne asymétrique + un fond linéaire. Les deux pics de ^{60}Co ont été ajustés par une fonction double gaussienne + le fond linéaire. Nous avons choisi cette fonction, car un ajustement avec une fonction double asymétrique gaussienne + le fond linéaire aurait besoin d'un grand nombre de paramètres à évaluer en même temps, ce qui donne origine à de grandes incertitudes sur les résultats obtenus.

Discrètement, dans le cas de l'asymétrie de gaussien, nous avons défini, pour chaque pic, la plus grande valeur de sigma parmi le sigma gauche et droit obtenus à partir de l'ajustement.

Source	E Calculée [keV]	Ref E [keV]	SigmaG	SigmaD
Na22_291109_1249	1019.9	1022	52.07	44.15
	1275.3	1274.5	55.5	50.6
	2294.5	2296.5	83.2	79.8
Cs137_291109_1752	659.61	661.66	42.54	41.16
Co60_291109_1526	2506.5	2505.7	82.99	85.99

Tableau 5.2.3 : Valeurs de sigma gauche et droit pour chaque pic de source, calibré avec une fonction gaussienne asymétrique dans le cas de spectre de somme logiciel.

Source	E Calculée [keV]	Ref E [keV]	SigmaG	SigmaD
Na22_291109_1249	510.18	511	34.85	36.01
	1273.56	1274.5	54.21	56.96
Cs137_291109_1752	659.33	661.66	37.9	42.25

Tableau 5.2.4 : Valeurs de sigma gauche et droit pour chaque pic de source, calibré avec une fonction gaussienne asymétrique dans le cas de spectre de somme statistique.

5.2.2.3. Résolution en énergie pour la somme logicielle

Dans ce paragraphe, nous présentons la résolution en énergie dérivant de l'analyse effectuée sur le spectre de somme logiciel. Figure 5.2.13 indique la tendance de σ^2 en fonction de l'énergie défini par $\sigma^2 = p_0 E^2 + p_1 E$, tandis que la figure 5.2.14 montre la différence entre la valeur de sigma obtenue à partir des données expérimentales et la valeur obtenue à partir de l'ajustement.

Dans le tableau 5.2.5, nous présentons la valeur moyenne estimée du pic, sa valeur de référence, la valeur du sigma et la différence entre la valeur expérimentale et la valeur obtenue par l'ajustement. Nous montrons également les paramètres p_0 et p_1 estimés par l'ajustement effectués avec ROOT.

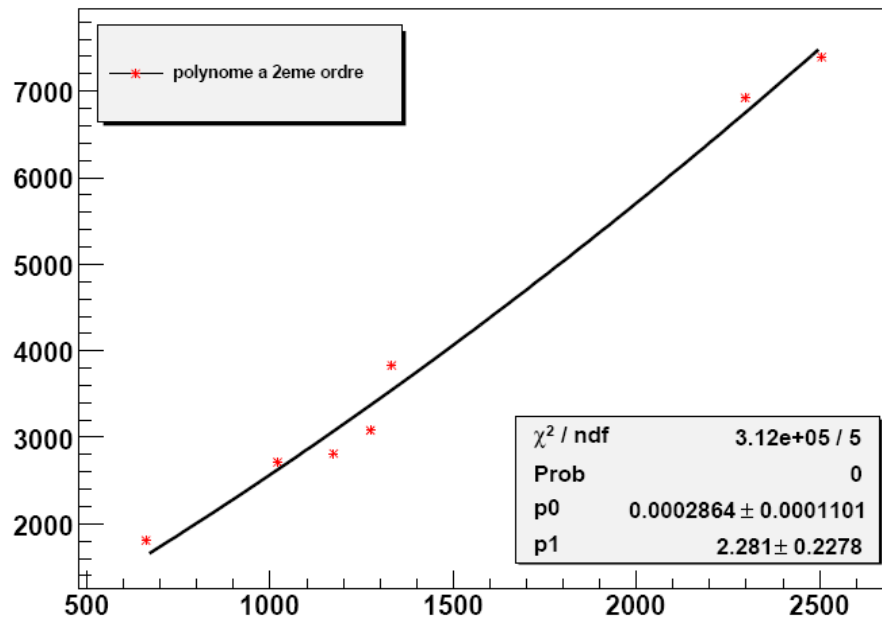


Fig. 5.2.13 : Courbe de σ^2 en fonction de énergie calibrée en formule $\sigma^2 = p_0 E^2 + p_1 E$ pour le somme logiciel.

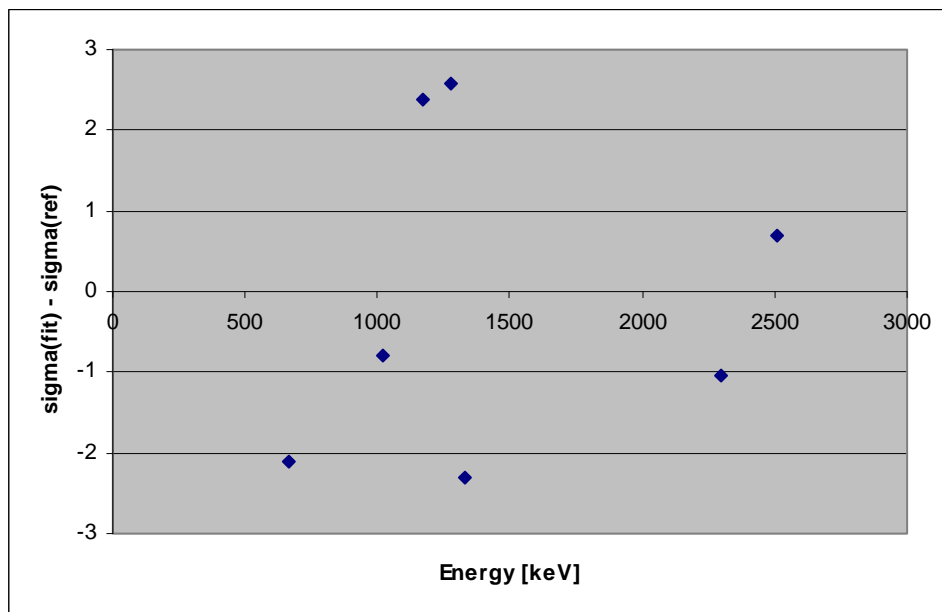


Fig. 5.2.14 : Différence entre les valeurs estimées du sigma par calibration et celles évaluées de l'expérience (somme logiciel).

Source	E Calculée [keV]	Ref E [keV]	Sigma	sigma(fit) - sigma(ref)
Na22_291109_1249	1019.9	1022	52.07	-0.78
	1275.3	1274.5	55.5	2.57
	2294.5	2296.5	83.2	-1.05
Cs137_291109_1752	659.61	661.66	42.54	-2.11
Co60_291109_1526	1172	1173.2	53.04	2.37
	1335	1332.5	61.88	-2.32
	2506.5	2505.7	85.99	0.69
Fit function avec ROOT	p0	0.0002864		
	p1	2.281		

Tableau 5.2.5 : Bilan de source : la valeur de l'énergie calibrée et son énergie de référence, le sigma, la différence entre la valeur expérimentale de sigma et la valeur de sigma calculée à partir de l'énergie de référence (somme logiciel).

5.2.2.4. Résolution en énergie pour la somme statistique

Dans la figure 5.2.15, 5.2.16 et le tableau 5.2.6, nous présentons les résultats pour le somme statistique de même façon appliquée dans le paragraphe précédent.

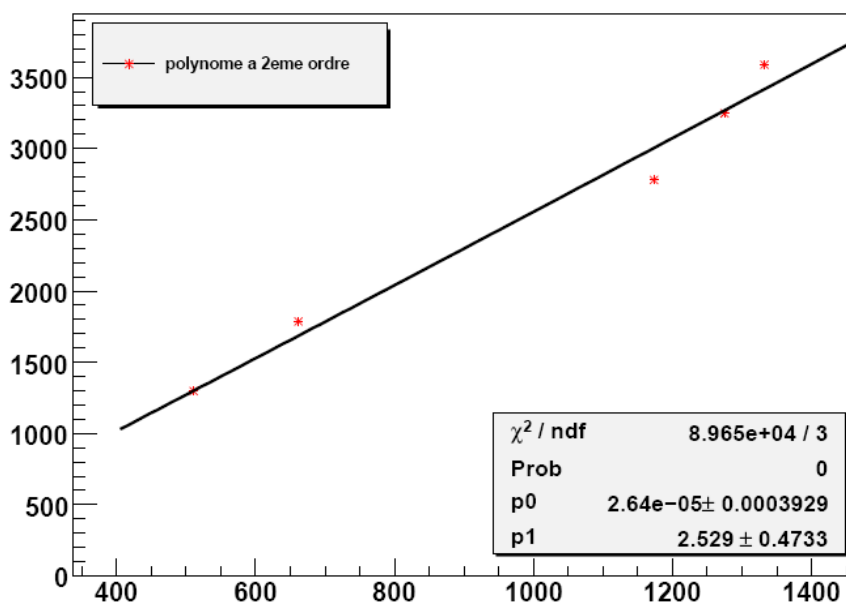


Fig. 5.2.15 : Courbe de σ^2 en fonction de énergie calibrée en formule $\sigma^2 = p_0 E^2 + p_1 E$ pour le somme statistique.

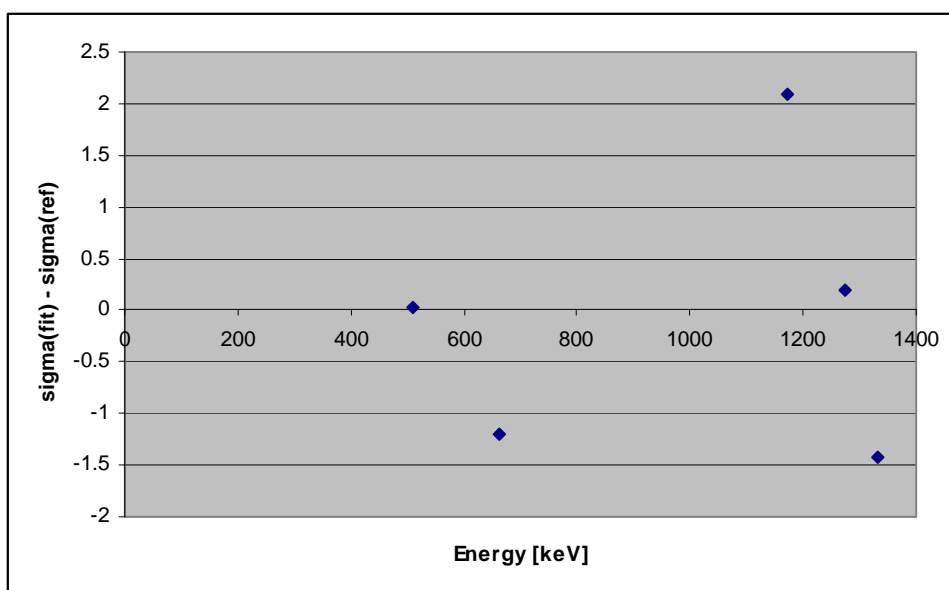


Fig. 5.2.16 : Différence entre les valeurs estimées du sigma par calibration et celles évaluées de l'expérience (somme statistique).

Source	E Calculée [keV]	Ref E [keV]	Sigma	sigma(fit) - sigma(ref)
Na22_291109_1249	510.18	511	36.01	0.04
	1273.56	1274.5	56.96	0.19
Cs137_291109_1752	659.33	661.66	42.25	-1.21
Co60_291109_1526	1172	1173.2	52.71	2.09
	1333	1332.5	59.88	-1.43
Fit fonction avec ROOT	p0	0.0000264		
	p1	2.529		

Tableau 5.2.6 : Bilan de source : la valeur de l'énergie calibrée et son énergie de référence, le sigma, la différence entre la valeur expérimentale de sigma et la valeur de sigma calculée à partir de l'énergie de référence (somme statistique).

5.2.2.5. Conclusions sur la résolution en énergie

La résolution en énergie calculée $R = 100 \text{ FWHM}/E = 235 \sigma/E$ par les deux techniques de sommation est rapportée dans le tableau 5.2.7.

Source	Energy [keV]	R _{TAS} [%]	R _{SC} [%]
Na22	511		16.56
Cs137	661.66	15.11	15.01
Na22	1022	11.97	
Co60	1173.2	10.62	10.56
Na22	1274.5	10.23	10.5
Co60	1332.5	10.91	10.56
Na22	2296.5	8.51	
Co60	2505.7	8.06	

Tableau 5.2.7 : Résolution des pics dans le spectre de somme logiciel (absorption totale R_{TAS}) et le spectre somme statistique (monocristal R_{SC})

On voit sur le tableau 5.2.7 que les résolutions obtenues par les sommes statistique et logicielle sont quasiment identiques.

5.2.3. Comparaison des différentes calibrations

En parallèle de mon analyse, nos collègues de Valence ont effectué également la calibration des détecteurs [104]. Nos méthodes présentent quelques différences mais les résultats obtenus en terme de calibration en énergie sont tout à fait similaires, comme en témoigne le tableau 5.2.8 qui compare les résolutions obtenues par les deux équipes pour les différents pics gammas associés aux différentes sources radioactives.

Source	Energy [keV]	RTAS [%] (1)	RTAS [%] (2)	$\frac{(1)-(2)}{(1)}$ [%]	RSC [%] (3)	RSC [%] (4)	$\frac{(3)-(4)}{(3)}$ [%]
		VM	Nos collègues		VM	Nos collègues	
Na22	511		15.3		16.56	16.5	0.36
Cs137	661.66	15.11	15.1	0.07	15.01	15	0.07
Na22	1022	11.97	11.6	3.09			
Co60	1173.2	10.62	10.3	3.01	10.56	10.3	2.46
Na22	1274.5	10.23	9.8	4.20	10.5	10.6	-0.95
Co60	1332.5	10.91	10.4	4.67	10.56	10.4	1.52
Na22	2296.5	8.51	8.1	4.82			
Co60	2505.7	8.06	7.6	5.71		7.5	

Tableau 5.2.8 : Résolution du pic pour le ‘total absorption spectra’ (RTAS) et le ‘single crystal spectra’ (RSC)

Dans le tableau 5.2.8, on voit la comparaison en pourcentage des deux méthodes : utilisant la somme logicielle et la somme statistique entre l’équipe de Subatech et nos collègues espagnols. La résolution montre le plus de cohérence dans le cas de la somme statique où l’écart maximal se trouve à 1.52%, tandis que le somme logiciel donne un écart maximal à 5.71%. C’est un résultat que l’on attend puisque dans le cas de la somme logicielle plusieurs raies gamma sont superposées ce qui va élargir les pics sommes obtenus, comparée au cas de la simple somme statistique de toutes les raies individuelles.

5.3. Suite de l'analyse des données

L'étape de calibration en énergie des détecteurs étant terminée, l'équipe s'est concentrée sur la simulation des contributions aux spectres présentés ci-dessus dues à l'empilement électronique des signaux (pile-up). L'équipe de Valence a ensuite développé une simulation du détecteur TAGS avec le code GEANT4 afin de caractériser le plus précisément possible la réponse du détecteur. L'équipe de SUBATECH a développé en parallèle de façon complémentaire la simulation du détecteur avec le code MCNPX. J'ai personnellement contribué à cette étape en simulant la géométrie du détecteur.

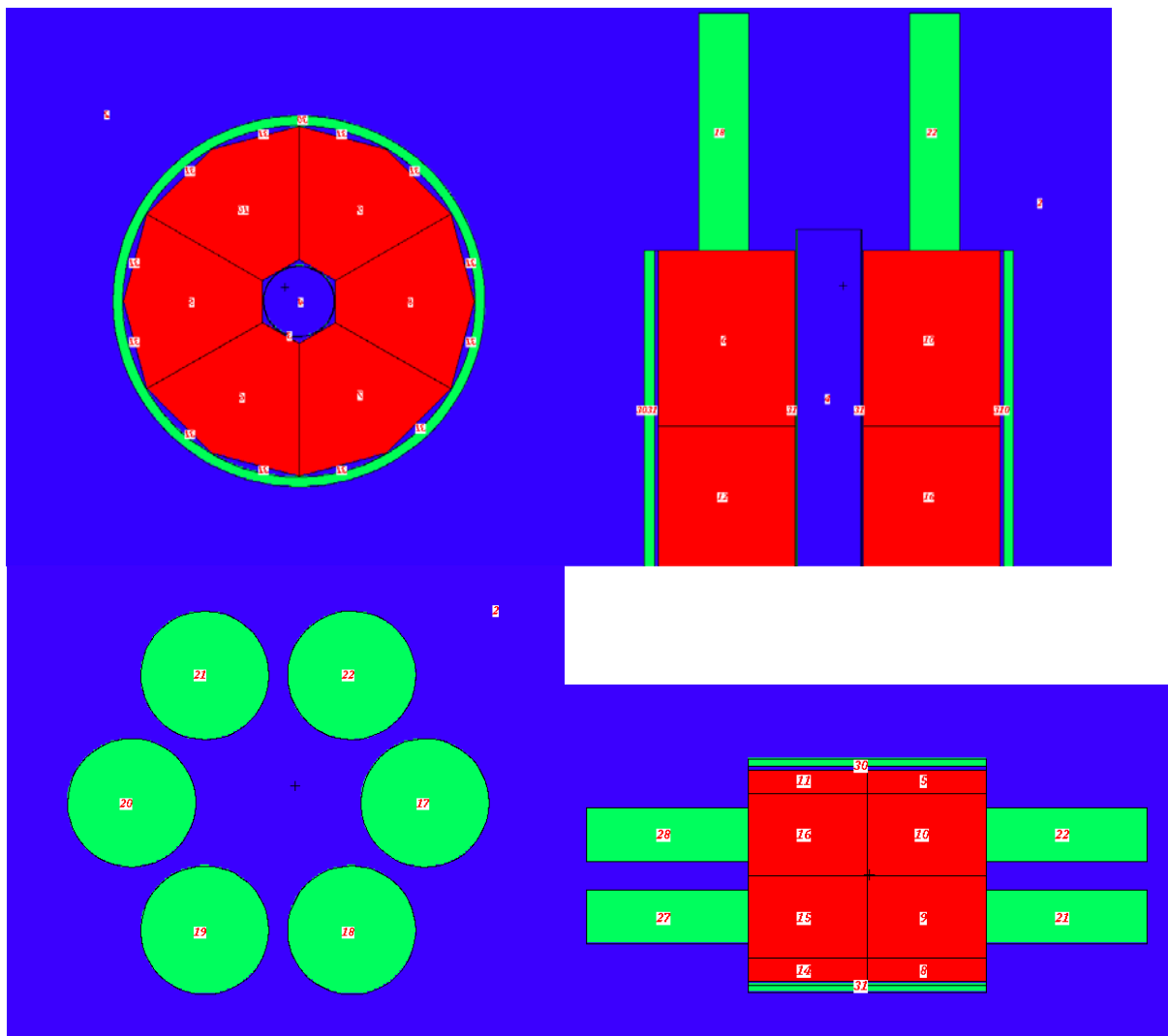


Fig. 5.3.1 : Différentes vues de la géométrie du détecteur simulée avec MCNPX.

On peut voir sur la fig. 5.3.1 la géométrie simulée. Dans un premier temps nous avons privilégié l'emploi de la simulation GEANT4 développée par l'équipe de Valence car ils ont pu la valider sur les données expérimentales. De notre côté, la géométrie devrait être désormais suffisamment détaillée après les informations complémentaires fournies et incluses dans la simulation MCNPX par Z. Issoufou, A. Porta et M. Fallot, mais l'utilisation de MCNPX pour générer des sources de multiples particules et des émissions de plusieurs

particules simultanément (+ détection en coïncidence) n'est pas aisée. Ces problèmes seront donc étudiés dans l'année qui vient, afin de disposer d'une seconde simulation du détecteur avec 2 codes différents, ce qui renforcera la fiabilité de notre analyse.

Ces étapes passées, l'analyse des caractéristiques de décroissance des 2 isotopes de Rb d'intérêt pourront être déduites par résolution du problème inverse, en appliquant la technique développée et validée mise au point par nos collaborateurs de Valence [35].

L'effet du bruit de fond et de l'empilement des signaux sur la mesure du noyau de ^{92}Rb est représenté sur la figure 5.3.2, avec le spectre du noyau résultant des soustractions de ces effets des données et prêt pour être analysé en bleu.

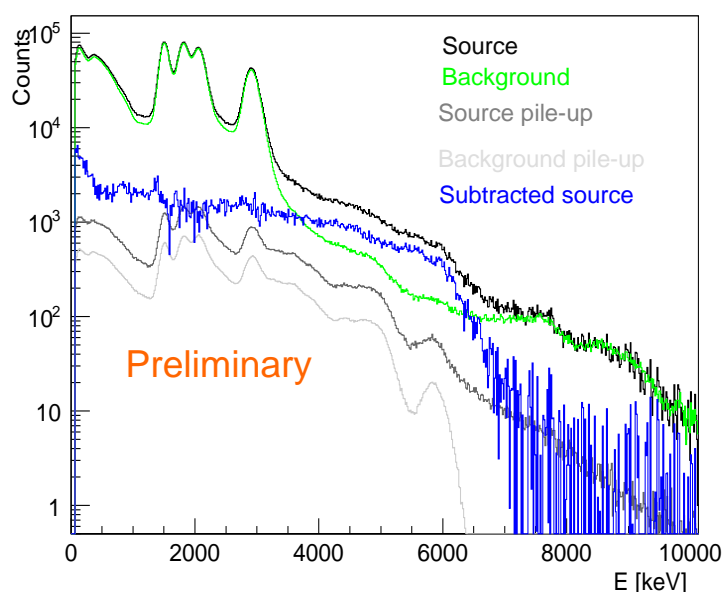


Fig. 5.3.2 : Comparaison entre le spectre brut de la source de ^{92}Rb (noir), son bruit de fond (vert), l'empilement du noyau (gris foncé) et du bruit de fond (gris clair). Les différences entre le spectre du noyau et le bruit de fond (vert), le noyau et le bruit de fond sans son empilement (bleu) et le spectre nettoyé final (noyau – bruit de fond sans son empilement – empilement du noyau, bleu), sont aussi montrés.

Sur la figure 5.3.3 de gauche, sont comparés le spectre reconstruit à partir de la réponse du détecteur et des informations d'alimentation qui sont présentes actuellement dans les bases de données nucléaires pour le ^{92}Rb (bleu) et le spectre obtenu expérimentalement (noir) du détecteur TAGS pris en coïncidence avec le détecteur Si. Le spectre bleu est obtenu de la résolution du problème inverse utilisant la méthode d'« expectation-maximisation » décrite dans la référence [35]. Dans la figure de droite le spectre bleu est obtenu en laissant libre de changer l'alimentation bêta.

Notre analyse semble indiquer une alimentation bêta du niveau fondamental plus élevée que dans les bases de données.

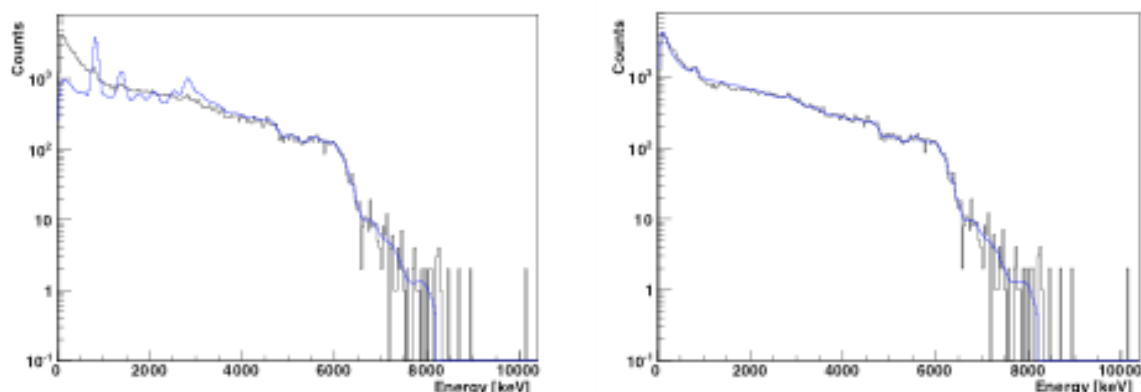


Fig. 5.3.3 : Gauche : comparaison entre les données (en noir) et le spectre (bleu) reconstruit à partir de la réponse du détecteur TAGS et de l'alimentation bêta incluant les informations présentes actuellement dans les bases de données nucléaires pour le ^{92}Rb [106]. Droite : comparaison entre les données (en noir) et le spectre (bleu) reconstruit à partir de la réponse du détecteur TAGS et en laissant libre de changer l'alimentation bêta.

Les données présentées ci-dessus sont préliminaires, l'analyse est en cours dans le cadre de la thèse de A. A. Zakari Issoufou. Nous savons d'ores et déjà que le ^{92}Rb joue un grand rôle dans les spectres d'antineutrinos émis par les réacteurs à eau pressurisée, et que les résultats définitifs auront un impact important pour la communauté de la physique des neutrinos, vers une estimation des spectres par la méthode de sommation de plus en plus fiables et indépendante des mesures réalisées par K. Schreckenbach et al. à l'ILL.

5.4. Conclusions et perspectives

En conclusion, j'ai réalisé pendant ma thèse un travail expérimental de physique nucléaire en étudiant la désintégration beta de noyaux d'intérêt pour la puissance résiduelle et la détermination du spectre en énergie des antineutrinos par la méthode de Spectroscopie par Absorption Totale (TAS). J'ai d'abord réalisé un premier tri des données puis calibré les données avec les données prises avec des sources radioactives connues. J'ai corrigé cette calibration de la dérive des gains associés aux cristaux de BaF2 en utilisant le bruit de fond intrinsèque aux cristaux. J'ai obtenu des résultats de calibration en énergie et de résolution en très bon accord avec ceux obtenus par nos collègues de Valence. J'ai de plus contribué au développement de la simulation du détecteur avec MCNPX. Le but de ce travail est d'avoir une simulation indépendante afin de la comparer à celle réalisée avec le logiciel GEANT4 dans le calcul de la matrice de réponse du détecteur. J'ai déjà développé la géométrie de l'ensemble des détecteurs avec MCNPX. Le reste de l'analyse sera poursuivi par A. A. Zakari Issoufou dans sa thèse sous l'encadrement d'A. Porta et M. Fallot. Le premier travail qui devra être effectué sera de soustraire la contribution des bruits de fond et de l'empilement des signaux dans les données brutes mesurées afin d'obtenir un spectre propre. Ce spectre sera ensuite utilisé dans la résolution de problème inverse afin d'en extraire la distribution d'alimentation beta [35]. Des résultats préliminaires concernent l'analyse du noyau ^{92}Rb qui est important pour les antineutrinos du réacteur et la puissance résiduelle, ces résultats

montrent que le ^{92}Rb subit probablement l'effet de Pandémonium. En 2013, une autre mesure des noyaux avec la participation de l'équipe Subatech aura lieu à Jyväskylä, en Finlande.

Conclusions et Perspectives

Dans cette thèse nous avons présenté des études d'intérêt pour l'étude d'une méthode innovante de surveillance des réacteurs nucléaires ; la détection des antineutrinos, ainsi que pour la puissance résiduelle des réacteurs à l'arrêt. Les antineutrinos comme la puissance résiduelle des réacteurs proviennent de la décroissance bêta des produits de fission présents dans le combustible. Ce travail de thèse peut être décomposé en trois parties ; l'étude d'un premier scénario proliférant avec les antineutrinos à l'aide de la simulation de canaux de réacteurs CANDU, la simulation du cœur du réacteur de recherche OSIRIS pour l'expérience Nucifer, petit détecteur d'antineutrinos dédié à la non-prolifération et enfin une contribution à l'analyse d'une expérience de mesure des propriétés de décroissance bêta de produits de fission contributeurs importants à la puissance résiduelle dégagée dans les premiers milliers de secondes après l'arrêt d'un réacteur de type REP et également à l'émission d'antineutrinos.

Avec le développement du marché de l'énergie nucléaire dans des pays en voie de développement, l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) devra contrôler un nombre croissant d'installations nucléaires afin d'assurer l'utilisation de cette source d'énergie dans un but civil. Dans ce contexte, l'AIEA a demandé à ses états membres dès 2003 de faire des études sur les détecteurs d'antineutrinos, considérés comme une méthode innovante potentielle pour surveiller les réacteurs nucléaires. En effet, les antineutrinos des réacteurs proviennent de la décroissance bêta des produits de fission créés dans le combustible. Ils sont directement reliés aux processus de fission, et leurs caractéristiques, flux et énergie, reflètent la composition du combustible. Leur flux reflète également la puissance thermique du réacteur. L'AIEA est particulièrement intéressée par les caractéristiques des antineutrinos provenant de réacteurs rechargeables en ligne, parmi lesquels les réacteurs CANDU. La première partie de ce travail est un travail de simulation.

Nous avons étudié des premiers scénarios proliférants pour des réacteurs rechargeables de type CANDU afin d'en estimer l'émission d'antineutrinos associée. Nous avons ainsi développé des simulations de canaux de réacteurs CANDU 6 rechargés à différentes fréquences. Dans un premier temps nous avons réalisé des vérifications neutroniques de notre simulation. Ces vérifications nous ont conduits à estimer le temps de rechargement moyen des canaux dans le cas d'un fonctionnement normal du réacteur. A partir de cette simulation d'un canal moyen, rechargé tous les 200 jours, nous avons estimé le flux moyen d'antineutrinos émis par le réacteur en fonctionnement normal. Nous avons ensuite simulé des scénarios proliférant, en prenant le principe que l'on peut détourner du plutonium de meilleure qualité en rechargeant plus souvent certains canaux du réacteur, rechargement qui devra être compensé par d'autres canaux rechargés moins souvent. Nous avons pris le parti de conserver le nombre total de rechargements puisque l'Agence Internationale de l'Energie Atomique peut compter les utilisations de la machine qui manipule les grappes du réacteur. Nous avons donc simulé deux cas proliférants : l'un où la moitié du cœur est rechargée tous les 100 jours tandis que l'autre moitié est rechargée tous les 300 jours, l'autre où une partie du cœur est rechargée tous les 50 jours et une autre tous les 350 jours en gardant des canaux rechargés tous les 200 jours. L'étude des écarts obtenus entre les flux d'antineutrinos détectés dans le cas légitime versus proliférant donne respectivement : 1.25 % et 2.8 %. Parmi ces deux cas, seul le second pourrait être détecté de façon fiable par un détecteur d'antineutrinos d'environ 1t placé à 25m du cœur du réacteur. Cependant, nous avons constaté que dans ces scénarios nos calculs ne

nous donnent pas une grande marge de réactivité. Nous nous sommes donc contentés dans un premier temps de faire des estimations, qui n'avaient jamais été faites auparavant dans le contexte des antineutrinos émis par les réacteurs. Il serait sans doute utile de réaliser des calculs plus précis.

Pour améliorer cette étude, une amélioration consisterait à simuler un cœur complet avec gestion des rechargements des canaux. Cette méthode, permettrait d'étudier si en variant la puissance du réacteur tout en rechargeant certains canaux plus fréquemment, on pourrait masquer l'écart de flux d'antineutrinos. Cette étude pourrait être réalisée avec le code déterministe DRAGON et le code de diffusion DONJON puisque l'emploi de la méthode Monte-Carlo serait inadapté pour simuler ce genre de gestion de cœur.

Une autre perspective intéressante serait de valider les simulations par des mesures. L'expérience CORMORAD [85] a tenté en 2010 de mesurer le flux d'antineutrinos émis par un réacteur CANDU en Roumanie. Malheureusement le prototype du détecteur était sans doute trop petit pour pouvoir mesurer efficacement les antineutrinos, et seule une étude complète du bruit de fond important mesuré a pu être effectuée. Actuellement, une équipe du Lawrence Livermore National Lab. (California, US) installe un détecteur auprès d'un réacteur CANDU 6 au Canada, à Point Lepreau. Le détecteur sera placé à 75m du cœur du réacteur, il s'agit d'une opportunité de mesurer les émissions des antineutrinos dès le démarrage du réacteur à partir d'un cœur neuf.

Les détecteurs d'antineutrinos ont été jusqu'ici majoritairement placés auprès des réacteurs thermiques à eau légère ou eau lourde (bientôt !). Une expérience japonaise [107] a déjà placé un détecteur d'antineutrinos, en surface, pour tenter de mesurer le flux émis par le réacteur de recherche à neutrons rapides de JOYO. Cependant la encore, la bruit de fond présent n'a pas permis de mesurer les antineutrinos émis. La question qui se pose naturellement est donc quelle est l'émission en antineutrinos de la nouvelle génération des réacteur, la génération IV, qui utilise beaucoup d' ^{238}U et ^{239}Pu comme combustible, mais aussi d'autres combustibles innovants. Les spectres en énergie des antineutrinos disponibles ne sont pas adaptées aux réacteurs de génération IV, il est donc nécessaire de calculer ces nouveaux spectres en énergie et de simuler les caractéristiques des antineutrinos émis par ces concepts de réacteurs innovants. La thèse de S. Cormon apportera déjà des premiers éléments de réponse à ces questions. Une étape complémentaire est de simuler, en couplant un détecteur à un code de simulation de réacteur, des expériences de non-prolifération envisagées afin de croiser les données obtenues par simulations et par mesures expérimentales pour améliorer la prédictabilité du code de simulation. L'expérience Double Chooz pourra réaliser cette comparaison dans sa seconde phase, grâce aux mesures du détecteur proche du réacteur et à la simulation détaillée des cœurs de la centrale [108]. Cette expérience pourra apporter une mesure de la sensibilité ultime de la détection des antineutrinos à la puissance thermique et au contenu fissile d'un réacteur.

La seconde partie de ce travail est le développement d'une simulation du réacteur de recherche Osiris dans le cadre du projet NUCIFER. Le projet NUCIFER est une expérience d'antineutrinos des réacteurs initialement dédiée à la non-prolifération. Le projet Nucifer a été réalisé en collaboration avec le CEA / IRFU / SPP et SPhN de Saclay, le CEA/DAM et le laboratoire CNRS/IN2P3/Subatech. Le détecteur d'antineutrinos Nucifer a été développé en s'inspirant des progrès techniques réalisés dans le cadre d'expériences de physique fondamentale telles que Double Chooz. Nucifer n'est pas le premier détecteur dédié à la non-prolifération avec ce principe de détection mais sa particularité est d'avoir été conçu pour

optimiser l'efficacité de détection et être installé près d'un réacteur de recherche, le réacteur OSIRIS de Saclay. Ses propriétés sont susceptibles d'intéresser l'Agence Internationale de l'Energie Atomique. La R&D du détecteur a été également adaptée pour maximiser la suppression de bruit de fond, très élevé auprès d'un réacteur de recherche et proche de la surface.

J'ai ainsi eu la tâche de développer la simulation du cœur du réacteur OSIRIS pour l'expérience avec un double objectif. Le premier est de fournir la prédiction de l'émission en antineutrinos du cœur du réacteur qui sera comparée aux mesures. Le second est de simuler le bruit de fond photonique important provenant du fonctionnement du réacteur afin de le caractériser plus précisément. Les résultats de l'inventaire obtenu avec notre simulation pour l' ^{235}U montre un bon accord avec celui calculé par l'équipe d'OSIRIS (1%). Cette simulation contribue tout d'abord à la prédiction du flux d'antineutrinos au démarrage à partir d'un cœur neuf jusqu'à l'équilibre avec un cycle de rechargement de 20 jours. Comme le combustible de ce type de réacteur est dominé par l' ^{235}U (19,75%), il minimise la contribution des taux de fission des autres noyaux tel que l' ^{238}U , ou le ^{239}Pu . En outre, le spectre en énergie des antineutrinos de l' ^{235}U est le mieux déterminé à ce jour, ce qui permettra de réduire les erreurs systématiques associées à la prédiction des antineutrinos pour l'expérience. Dans un second temps, une simulation complète, comprenant le cœur, la piscine et le mur en béton autour du réacteur a été effectuée pour caractériser le bruit de fond dans la casemate OPERA à 7m du cœur. L'étape suivante sera bien sûr d'analyser les résultats de Nucifer en 2012-2013, et d'en déduire la sensibilité d'un tel détecteur pour la surveillance d'un réacteur de recherche. Le travail réalisé sur la caractérisation des bruits de fond pourrait également servir à d'autres expériences similaires, comme celles citées ci-dessus, qui seront confrontées à des bruits de fond générés par les réacteurs très importants. De plus, Nucifer s'est enrichi d'une motivation de physique fondamentale ; apporter une contrainte sur l'existence éventuelle de neutrinos stériles. Suite à cette nouvelle quête, de nombreuses expériences proches de réacteurs de recherche sont proposées. La caractérisation du bruit de fond provenant de ces réacteurs sera essentielle. Du point de vue de la non-prolifération, Nucifer servira de référence pour d'autres concepts plus innovants de détecteurs, comme par ex. le concept du détecteur MARS développé par l'Université d'Oxford, basé sur des détecteurs plastiques segmentés.

La troisième partie de cette thèse concerne ma contribution expérimentale à la problématique de la décroissance bêta des produits de fission, à l'origine de la puissance résiduelle des réacteurs à l'arrêt et des antineutrinos des réacteurs. Beaucoup de produits de fission de durée de vie courte sont très mal caractérisés, car leurs spectres de rayons gamma ont été mesurés de façon incomplète ou non mesurés. Ce fait est particulièrement vrai pour les noyaux avec des schémas de décroissance compliqués et de grandes valeurs Q_β . Les méthodes de spectroscopie les plus courantes utilisent des détecteurs au Germanium de haute résolution. Dans une telle situation, la décroissance vers les hautes énergies d'excitation n'est pas observée et incorrectement attribuée à des niveaux plus bas. Ce problème expérimental est appelé effet Pandémonium. Cet effet peut avoir des conséquences directes pour les calculs de la chaleur de décroissance parce que l'énergie libérée par les rayons bêta peut être surestimée et l'énergie des rayons gamma peut être sous-estimée. Aujourd'hui, plusieurs études sont réalisées pour corriger les bases de données afin d'éliminer ce biais. La méthode TAGS (Total Absorption Gamma-ray Spectrometer) est une méthode expérimentale qui permet de s'affranchir de l'effet Pandémonium. La technique d'absorption totale de spectroscopie des rayons gamma est basée sur la détection de la somme de toute l'énergie des rayons gamma produits à partir de la désexcitation d'un niveau peuplé dans la chaîne de désintégration bêta au lieu de détecter chaque rayon gamma individuel comme dans la spectroscopie à haute

résolution. Idéalement, le spectre d'énergie fourni par un TAGS, a des pics somme correspondant à l'énergie totale déposée dans le spectromètre par les cascades de rayons gamma. Cette méthode peut nous aider à corriger les bases de données existantes, et présente donc un intérêt pour la puissance résiduelle et les antineutrinos.

Ma contribution a consisté à analyser les données prises avec des sources de ^{60}Co , ^{137}Cs et ^{22}Na pour calibrer le détecteur TAGS utilisée lors d'une expérience réalisée auprès du dispositif expérimental de Jyväskylä, en Finlande, fin 2009. Lors de cette expérience, nous avons pu mesurer des données sur les noyaux $^{92,93}\text{Rb}$ issus de la proposition d'expérience faite par Subatech, d'intérêt pour la puissance résiduelle et les antineutrinos des réacteurs. Le même travail a été réalisé à l'IFIC en parallèle avec des données prises à Valence, Espagne. Les valeurs de calibration en énergie obtenues ont servi à calculer ensuite la résolution en énergie du détecteur. Les résultats sont présentés dans le chapitre 5 et montrent la bonne cohérence avec les résultats de nos collègues de Valence. Nos collègues ont développé une simulation du détecteur TAGS avec le code GEANT4 afin de caractériser la réponse du détecteur. L'équipe de SUBATECH a également développé en parallèle une simulation du détecteur avec le code MCNPX dans laquelle j'ai élaboré la première version de la géométrie. La suite de l'analyse a été prise en charge par Z. Issoufou pour sa thèse de doctorat et A. Porta. Une distribution préliminaire d'alimentation bêta a été obtenue pour le ^{92}Rb , montrant que les mesures précédentes avaient sous-estimé l'alimentation de l'état fondamental du noyau fils et que le schéma de décroissance présent dans les bases de données doit être corrigé. En parallèle, des études en cours [50], [109] montrent que ce noyau joue un grand rôle dans le spectre en énergie des antineutrinos des réacteurs, et que sa contribution pourrait peut-être expliquer la forme des spectres en énergie mesurées récemment par les expériences Daya Bay et Double Chooz. Les résultats définitifs de cette analyse sont donc très attendus par la communauté de physique des neutrinos des réacteurs.

Bibliographie

- [1] Alternatives Economiques n° 278 - mars 2009
- [2] J. A. Héraud, 'La question de l'épuisement du pétrole', Conf. Du jardin des Sciences, France, Février 2006
- [3] www.developpement-durable.gouv.fr
- [4] www.notre-planete.info/actualites/actu_890_niveau_oceans_rechauffement_climat.php
- [5] <http://www.euronuclear.org/info/encyclopedia/n/nuclear-power-plant-world-wide.htm>
- [6] www.nea.com
- [7] J.H. Keppler, 'L'énergie nucléaire est-elle vraiment compétitive?', source NEA Infos 2010 N° 28.1
- [8] [http://www.cea.fr/energie/les-systemes-nucleaires-du-futur\(clefs55_p017_022_Capus\)](http://www.cea.fr/energie/les-systemes-nucleaires-du-futur(clefs55_p017_022_Capus))
- [9] nucleaire.cea.fr/fr/repere/nucleaire_economie.htm
- [10] <http://www.connaissancedesenergies.org/fiche-pedagogique/reserves-d-uranium-naturel-dans-le-monde>
- [11] Vogel P. et al., 'Reactor Anti-neutrino Spectra and Their Application to Anti-neutrino Induced Reactions', Phys. Rev. C24 (1981) 1543
- [12] H. Métivier, 'Radioprotection et Ingénierie Nucléaire', EDP Sciences, Collection Génie Atomique, (2006)
- [13] P. Reuss, 'Précis de Neutronique', EDP Sciences, Collection Génie Atomique, (2006)
- [14] Thèse de doctorat de D. Jordan et al., 'Beta Decay Total Absorption Spectroscopy Measurements for Reactor Decay Heat Calculations', IFIC Valencia, Spain, 2010
- [15] H. V. Klapdor, 'The Shape of The Beta Strength Function and Consequences for Nuclear Physics and Astrophysics', Prog. Part. Nucl. Phys., 10 (1983) 131.
- [16] A. Tobias, 'Decay Heat', Prog. In Nucl. Energy 5 (1980).
- [17] <http://www.laradioactivite.com/>
- [18] J-C. Nimal, Sûreté et puissance résiduelle, Clefs du CEA numéro 45 (2001)
- [19] F. Schmittoth, 'Uncertainty Analysis of Fission-Product Decay-Heat Summation Methods', Nucl. Sci. Eng. 59 (1976) 117
- [20] K. Oyamatsu et al., 'Uncertainties in summation calculations of aggregate decay heat and delayed neutron emission with ENDF/B-VI', Proc. Int. Conf. Nucl. Data for Science and Technology, Vol. 59 (1997) 756.
- [21] John M. Blatt and Victor F. Weisskopf, 'Theoretical Nuclear Physics', Dover Publications, Inc. New York, (1991)

- [22] J. C. Hardy et al., ‘The Essential Decay of Pandemonium: A Demonstration of Errors in Complex Beta-Decay Schemes’, *Phys. Lett.* 71B, (1977) 307.
- [23] Fukuda, S. et al. (Super-Kamiokande coll.), ‘Determination of Solar Neutrino Oscillation Parameters Using 1496 Days of Super-Kamiokande I Data.’ *Phys. Lett. B* 539 (2002) 179.
- Eguchi, K. et al. (Kamland coll.), ‘First Results from KAMLAND: Evidence for Reactor Antineutrino Disappearance’, *Phys. Rev. Lett* 90 (2003) 021802
- [24] Ardellier, F. et al., ‘Double Chooz: A Search for the Neutrino Mixing Angle θ_{13} ’. arXiv: hep-ex/0606025v4, (2006).
- [25] Apollonio, M. et al. (CHOOZ), 2003. ‘Search for Neutrino Oscillations on a Long Base-line at the CHOOZ Nuclear Power Station’ *Eur. Phys. J. C* 27 (2003) 331-374
- [26] Y. Abe et al., ‘Indication for The Disappearance of Reactor Electron Antineutrinos in the Double Chooz Experiment’, *Phys. Rev. Lett.* 108, 131801 (2012).
- [27] F. P. An et al., ‘Observation of Electron-Antineutrino Disappearance at Daya Bay’, *Phys. Rev. Lett.* 108, 171803 (2012).
- [28] K. Ahn et al., ‘Observation of Reactor Electron Antineutrinos Disappearance in the RENO Experiment’, *Phys. Rev. Lett.* 108, 191802 (2012).
- [29] Y. Abe et al., Double Chooz collaboration, *Phys. Rev. Lett.* 108, 131801 (2012), <http://arxiv.org/abs/1207.6632>.
- [30] Kopeikin V. I., Mikaelyan L. A., and Sinev V. V., ‘Spectrum of Electronic Reactor Anti-neutrinos’, *Phys. Atom. Nucl.* 60 (1997) 172.
- [31] Klimov et al., ‘Neutrino Method Remote Measurement of Reactor Power and Power Output’, *Atomic Energy*, Vol 76, No.2, 123-127, (1994)
- [32] A. Porta et al., ‘Reactor Neutrino Detection for Non Proliferation with the Nucifer Experiment’, ANIMMA International Conference, Marseille, France, June 2009
- [33] M. Fallot, ‘Antineutrino Detection As A Novel Tool For Reactor Monitoring: An Update Since Last Meeting’, talk at the ESARDA NA/NT WG Meeting – Luxembourg, 23 Mai, 2012,
- [34] A. Algora et al., ‘Fine Structure of the Gamow-Teller Resonance Revealed in The Decay of ^{150}Ho 2⁻ isomer’, *Phys. Rev. Lett. C* 68, (2003) 034301
- [35] J. L. Tain and D. Cano-Ott, ‘New Antineutrino Energy Spectra Predictions From the Summation of Beta Decay Branches of The Fission Products’, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* 571, 728 (2007); 571, 719 (2007).
- [36] D. Cano-Ott et al., ‘Pulse Pileup Correction of Large NaI(Tl) Total Absorption Spectra Using The True Pulse Shape’, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect., A* 430, 488 (1999);

‘Monte Carlo Simulation of The Response of a Large NaI(Tl) Total Absorption Spectrometer for Beta-Decay Studies’, 430, 333 (1999).

[37] R. C. Greenwood et al., ‘Measurement of —Beta-Decay Intensity Distributions of Several Fission-Product Isotopes Using a Total Absorption gamma-ray Spectrometer’, Nucl. Instr. and Meth. A 390 (1997) 95.

[38] T. Yoshida et al., ‘Reconsideration of the Theoretical Supplementation of Decay Data in Fission Product Decay Heat Summation Calculations’, Journal of Nucl. Science and Technology 43 (2006) 497.

[39] WPEC report, Vol. 25, ‘Assessment of Fission Product Decay Data for Decay Heat Calculations’.

[40] A. Algora et al., ‘Reactor Decay Heat in ^{239}Pu : Solving The Gamma Discrepancy in The 4-3000s Cooling Range’, Phys. Rev. Lett. 105, 202501 (2010).

[41] A. Tobias, ‘Derivation of Decay Heat Benchmarks for U235 and Pu239 by a Least Squares Fit to Measured Data’, CEGB Report No. RD/B/6210/R89, (1989).

[42] K. Schreckenbach et al., ‘Absolute Measurement of The Beta Spectrum from ^{235}U Fission as a Basis for Reactor Antineutrino Experiments’, Phys. Lett. 99B, 251 (1981).

[43] K. Schreckenbach et al., ‘Determination of The Antineutrino Spectrum from ^{235}U Thermal Neutron Fission Product up to 9.5 MeV’, Phys. Lett. 160B, 325 (1985).

[44] F. von Feilitzsch, A. A. Hahn and K. Schreckenbach, ‘Experimental Beta Spectra From Pu-239 and U-235 Thermal Neutron Fission Products and Their Correlated Anti- neutrinos Spectra’, Phys. Lett. 118B, 162 (1982).

[45] A. A. Hahn et al., ‘Anti-neutrino Spectra From Pu-241 and Pu-239 Thermal Neutron Fission Products’, Phys. Lett. B218 (1989) 365.

[46] Th. Mueller et al., ‘Improved Predictions of Reactor Antineutrino Spectra’, Phys. Rev. C83, 054615 (2011).

[47] G. Mention et al., ‘The Reactor Antineutrino Anomaly’, Phys. Rev. D83, 073006 (2011).

[48] P. Huber, ‘On The Determination of Anti-neutrino Spectra From Nuclear Reactors’ Phys. Rev. C84, 024617 (2011).

[49] Thèse de doctorat de S. Cormon, ‘Etudes du potentiel de la détection des antineutrinos pour la surveillance des réacteurs à des fins de lutte contre la prolifération’ laboratoire Subatech (LUNAM - CNRS/IN2P3 - EMN), France, 2012.

[50] M. Fallot et al., ‘New Antineutrino Energy Spectra Predictions from The Summation of Beta Decay Branches of The Fission Products’, Phys. Rev. Lett. 109 :202504,(2012), <http://arxiv.org/abs/1208.3877>

- [51] Proposal to the PAC of the JYFL Accelerator Laboratory ‘Study of Nuclei Relevant for Precise Predictions of Reactor Neutrino Spectra’, spokespersons : M. Fallot, A. Algora, J.L. Tain
- [52] Judith F. Briesmeister, Editor, MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, version 4C.
- [53] O. Méplan et al., ‘MURE : MCNP Utility for Reactor Evolution - Description of The Methods, First Applications and Results’, Proceedings of the ENC, France, (2005).
- [54] <http://www.oecd-neo.org/tools/abstract/detail/nea-1845>
- [55] <http://lpsc.in2p3.fr/MURE/html/doxygen/index.html>
- [56] H. Nifenecker, O. Méplan, S. David, ‘Accelerator Driven Subcritical Reactors’, Series in Fundamental and Applied Nuclear Physique.
- [57] Communication privée Anthony Onillon, Subatech, 2012
- [58] Thèse de doctorat de N. Capellan, ‘Couplage 3D neutronique thermohydraulique. Développement d’outils pour les études de sûreté des réacteurs innovants’, France, (2009)
- [59] Thèse de doctorat de B. Léniau, ‘Caractérisation de sources radioactives : Applications au cycle du Thorium’, en préparation.
- [60] <http://www.cna.ca/>
- [61] M. V. Ramana et al., ‘Economics of Nuclear Power from Heavy Water Reactors’, Economic and Political Weekly, (2005).
- [62] Stephen Yu, Jerry Hopwood et Dan Meneley, ‘Réacteurs à eau lourde’, Techniques de l’Ingénieur, BN3210.
- [63] IAEA Report « Final Report of the Focused Workshop on Antineutrino Detection for Safeguards Applications », STR-361, Department of Safeguards
- [64] Thèse de doctorat de P. Guillemin, ‘Recherche de la haute conversion en cycle thorium dans les réacteurs CANDU et REP. Développement des méthodes de simulation associées et étude de scénarios symbiotiques’, France, Décembre 2009.
- [65] www.aecl.ca
- [66] A. Nuttin et al., ‘Study of CANDU Thorium-based Fuel Cycles by Deterministic and Monte Carlo Methods’, Proceedings of the International Conference PHYSOR-2006, Vancouver, Canada, (2006).
- [67] D. Rozon, ‘Introduction à la cinétique des réacteurs nucléaires’, Edition de l’Ecole Polytechnique de Montréal, (1992).
- [68] R. Chambon, Rapport Interne LPSC 06.130, France, 2007

- [69] Significant Quantities of fissile material and timeliness detection (all materials irradiated in-core – source IAEA safeguards glossary 2001)
- [70] A. Onillon et al. En préparation, collab. DChooz
- [71] C. Jones et al. Phys. Rev. D 86, 012001 (2012)
- [72] Guy Jonksman, présentation au workshop ‘Applied Anti-Neutrino Physics’ AAP 2011, Vienne, sept. 2011
- [73] http://nucleaire-saclay.cea.fr/en/Phoce/Vie_des_labos/Ast/ast_theme.php?id_ast=64
- [74] A. Cucoanes on behalf of the Nucifer Collab. Int. Conf. TAUP 2011 proceedings, The Nucifer experiment, Proceedings of the International Conference TAUP, July 2009
- [75] A. Porta et al. (Nucifer collab.), ‘Reactor Neutrino Detection for Non Proliferation with The Nucifer Experiment’, Journal of Physics: Conference series 203 (2010)012092
- [76] N. Bowden et al., ‘Experimental Results from an Antineutrino Detector for Cooperative Monitoring of Nuclear Reactors’, Nucl. Instr. Methods A 572(2007)985
- [77] <http://irfu.cea.fr/Sphn/>
- [78] geant4.cern.ch
- [79] <http://www.asn.fr/index.php/L-ASN-en-region/Division-de-Lyon/Activites-de-recherche/Reacteur-a-haut-flux-RHF>
- [80] A. Porta et al., ‘Reactor Neutrino Detection for Non Proliferation with the NUCIFER Experiment’, ESARDA International Conference 2011, Budapest, April 2011.
- [81] Rapport Nucifer 26/05/2008
- [82] <http://gentitfx.fr/litrani/>
- [83] Thèse de F. Malouch, ‘Acroissement du flux rapide pour des expériences de dommages dans un réacteur de recherche’, 2003, Rapport-CEA-R-6034
- [84] A. Porta, ‘Nucifer: Reactor Neutrino Detection for Thermal Power Measurement and Non-Proliferation Purpose’, GDR Neutrino Meeting, April 2008
- [85] M. Battaglieri et al., ‘An Anti-neutrino Detector to Monitor Nuclear Reactor’s Power and Fuel Composition’, Nucl. Instr. and Meth A 617 (2010) 209-213
- [86] Rapport de stage M1 de l’école PHELMA de Grenoble de G. Mercier, Subatech, 2010
- [87] Plaquette de présentation du réacteur OSIRIS, CEA/DEN, http://nucleaire.cea.fr/fr/publications/pdf/osiris_plaquette_FR.pdf
- [88] Monographie de la DEN, ‘Les réacteurs nucléaires expérimentaux’, Mars 2012, p31, 73 à 85

- [89] Stage de M1 Paris-Tech de V. Communeau, 'Calculation of The Antineutrino Energy Spectrum Emitted by The OSIRIS Research Reactor for The NUCIFER Experiment', SUBATECH, 2012.
- [90] Note Technique N1394, Service d'Exploitation du Réacteur Osiris, CEA Saclay, 23/04/2002
- [91] <http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/tab3.html>
- [92] A partir de la source INIST [Table of X Ray Mass attenuation coefficients and mass energy absorption coefficients from 1 keV to 20 MeV, J. H. Hubbell and S. M. Seltzer, 2011 <http://www.nist.gov/pml/data/xraycoef/index.cfm>].
- [93] MCNP/MCNPX Intermediate Workshop, France, (2011).
- [94] <http://www-xdiv.lanl.gov/projects/data/nuclear/mcnpdata.html>
- [95] Cours de physique nucléaire de Philippe Eudes, Subatech, 2012
- [96] W. R. Leo, 'Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments : A How-To Approach', Springer, (1994).
- [97] G. F. Knoll, 'Radiation, Detection and Measurement', John Wiley and Sons 3rd Edition, (1999)
- [98] M.C. Miller, 'Passive Non Destructive Assay of Nuclear Materials', NRC, NUREG/CR-5550, (1991)
- [99] Handbook of Photonuclear Data for Applications: Cross Sections and Spectra, IAEA-TECDOC-1178, Final report 2000
- [100] B. Leniau, Communication Privée, France, 2011.
- [101] A. Lebrun et al., 'Gamma Spectrometric Characterization of Short Cooling Time Nuclear Spent Fuels Using Hemispheric CdZnTe Detectors', NIM A448 (2000) p598
- [102] A. W. Hermann et C. W. Alexander, 'A Review of Spent Fuel Photon and Neutron Source Spectra', ORNL/TM-205, (1986)
- [103] Thèse de doctorat de G. Canchel, 'Apport de la désintégration bêta à la structure de noyaux riches en proton : $^{125}\text{Ce} \rightarrow ^{125}\text{La}$ à l'aide d'HIGISOL, émission différée de proton du ^{27}S avec le spectromètre LISE', France, Décembre 2000.
- [104] Stage de Master 2 d'E. V. Marin, 'Characterization of a Segmented BaF₂ Total Absorption Gamma-Ray Spectrometer', Espange, Décembre 2010.
- [105] <http://root.cern.ch>
- [106] Coral M. Baglin, Nuclear Data Sheets 91, 423 (2000) Nuclear Data Sheets for A = 92* .
- [107] H. Furuta et al., 'A Study of Reactor Neutrino Monitoring at the Experimental Fast Reactor JOYO', Nucl. Inst. Meth., A662 (2012) 90-100.

[108] Thèse de doctorat d'A. Onillon, en cours de préparation.

[109] A. Sonzogni, Communication Privée, 2012

Thèse de Doctorat

Van Minh BUI

La décroissance bêta des produits de fission pour la non-prolifération et la puissance résiduelle des réacteurs nucléaires

Beta decay of fission products for the non-proliferation and decay heat of nuclear reactors

Résumé

Aujourd'hui, l'énergie nucléaire représente une partie non-négligeable du marché énergétique mondial, très probablement vouée à croître dans les prochaines décennies. Les réacteurs du futur devront notamment répondre à des critères supplémentaires économiques mais surtout de sûreté, de non-prolifération, de gestion optimisée du combustible et d'une gestion responsable des déchets nucléaires.

Dans le cadre de cette thèse, des études concernant la non-prolifération des armes nucléaires sont abordées, dans le cadre de la recherche et développement d'un nouvel outil potentiel de surveillance des réacteurs nucléaires ; la détection des antineutrinos des réacteurs. En effet, les propriétés de ces particules pourraient intéresser l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) en charge de l'application du Traité de non-prolifération des armes nucléaires. L'AIEA encourage ainsi ses états membres à mener une étude de faisabilité. Une première étude de non-prolifération est réalisée avec la simulation d'un scénario proliférant utilisant un réacteur de type CANDU et de l'émission en antineutrinos associée. Nous en déduisons une prédiction de la sensibilité d'un détecteur d'antineutrinos de taille modeste à la diversion d'une quantité significative de plutonium. Une seconde étude est réalisée dans le cadre du projet Nucifer, détecteur d'antineutrinos placé auprès du réacteur de recherche OSIRIS. Nucifer est un détecteur d'antineutrinos dédié à la non-prolifération à l'efficacité optimisée conçu pour être un démonstrateur pour l'AIEA. La simulation du réacteur OSIRIS est développée ici pour le calcul de l'émission d'antineutrinos qui sera comparée aux données mesurées par le détecteur ainsi que pour caractériser le bruit de fond important émis par le réacteur détecté dans Nucifer. De façon générale, les antineutrinos des réacteurs sont émis lors des décroissances radioactives des produits de fission. Ces décroissances radioactives sont également à l'origine de la puissance résiduelle émise après l'arrêt d'un réacteur nucléaire, dont l'estimation est un enjeu de sûreté. Nous présenterons dans cette thèse un travail expérimental dont le but est de mesurer les propriétés de décroissance bêta de produits de fission importants pour la non-prolifération et la puissance résiduelle des réacteurs. Des premières mesures utilisant la technique de Spectroscopie par Absorption Totale (TAGS) ont été réalisées auprès du dispositif de l'Université de Jyväskylä. Nous présenterons la technique employée, le dispositif expérimental ainsi qu'une partie de l'analyse de cette expérience.

Mots clés

Antineutrinos, non-prolifération, puissance résiduelle, réacteur nucléaire, CANDU, Osiris, Nucifer, décroissance bêta, TAGS, effet Pandémonium.

Abstract

Today, nuclear energy represents a non-negligible part of the global energy market, most likely a rolling wheel to grow in the coming decades. Reactors of the future must face the criteria including additional economic but also safety, non-proliferation, optimized fuel management and responsible management of nuclear waste.

In the framework of this thesis, studies on non-proliferation of nuclear weapons are discussed in the context of research and development of a new potential tool for monitoring nuclear reactors, the detection of reactor antineutrinos, because the properties of these particles may be of interest for the International Agency of Atomic Energy (IAEA), in charge of the verification of the compliance by States with their safeguards obligations as well as on matters relating to international peace and security. The IAEA encouraged its member states to carry on a feasibility study. A first study of non-proliferation is performed with a simulation, using a proliferating scenario with a CANDU reactor and the associated antineutrinos emission. We derive a prediction of the sensitivity of an antineutrino detector of modest size for the purpose of the diversion of a significant amount of plutonium. A second study was realized as part of the Nucifer project, an antineutrino detector placed nearby the OSIRIS research reactor. The Nucifer antineutrino detector is dedicated to non-proliferation with an optimized efficiency, designed to be a demonstrator for the IAEA. The simulation of the OSIRIS reactor is developed here for calculating the emission of antineutrinos which will be compared with the data measured by the detector and also for characterizing the level of background noises emitted by the reactor detected in Nucifer. In general, the reactor antineutrinos are emitted during radioactive decay of fission products. These radioactive decays are also the cause of the decay heat emitted after the shutdown of a nuclear reactor of which the estimation is an issue of nuclear safety. In this thesis, we present an experimental work which aims to measure the properties of beta decay of fission products important to the non-proliferation and reactor decay heat. First steps using the technique of Total Absorption Gamma-ray Spectroscopy (TAGS) were carried on at the radioactive beam facility of the University of Jyväskylä. We will present the technique used, the experimental setup and part of the analysis of this experiment.

Key Words

Antineutrinos, non-proliferation, decay heat, nuclear reactor, CANDU, Osiris, Nucifer, beta decay, TAGS, Pandemonium effect.